

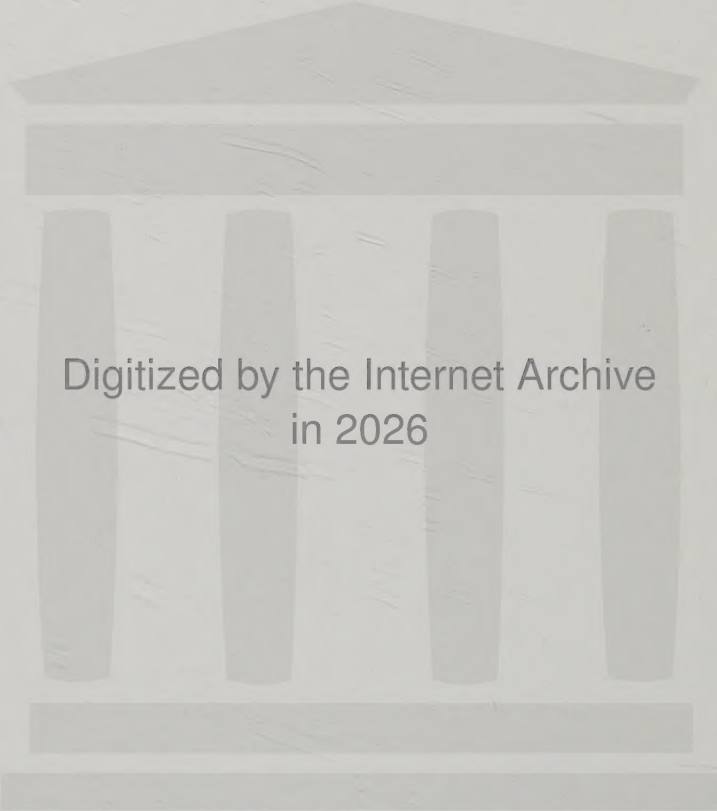
Untersuchung der Temperaturabhängigkeit
der Relaxation des bei der Kernreaktion
 $^{109}\text{Ag}(p,n)^{109}\text{Cd}^*$ erzeugten Alignements
der ^{109}Cd Kerne im 469 keV, $\frac{11}{2}^-$ -Zustand

von

Eike Rinsdorf

aus

Berlin



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548610_0067

Als Dissertation genehmigt
von der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Erlangen-Nürnberg



Tag der mündlichen Prüfung: 10. 5. 1972
Dekan: Prof. Dr. K. Jacobs
Erstberichterstatter: Prof. Dr. H. Wegener
Zweitberichterstatter: Prof. Dr. J. Christiansen

Z U S A M M E N F A S S U N G

Die Temperaturabhängigkeit der Relaxation des bei der Kernreaktion $^{109}\text{Ag}(p,n)^{109}\text{Cd}^*$ erzeugten Alignements der ^{109}Cd Kerne im $469\text{ keV}, \frac{11}{2}^-$ - Zustand (g -Faktor = -0.1982 ± 0.0004 [BFJ 70]) wurde durch stroboskopische Beobachtung der Larmorpräzession [CMR 68] bestimmt.

Die Geschoßenergie betrug $E_p = 10\text{ MeV}$. Das in einem Ofen angebrachte Target aus natürlichem Ag (99.9 %) konnte auf Temperaturen bis circa 1000°C aufgeheizt werden.

Die Zerstörung des Alignements wurde durch die Wechselwirkung eines fluktuierenden elektrischen Feldgradienten mit dem elektrischen Quadrupolmoment des $^{109}\text{Cd}^*$ erklärt. Als Ursache für die Fluktuationen des Feldgradienten wurde die Diffusion von Störstellen bzw. die des Cd^* selbst angenommen.

Die anfängliche Annahme eines einzigen Störmechanismus führte über einen "least square fit" der theoretischen Kurve an die experimentellen Daten zu einer Wanderungsenergie $E^M = (0.268 \pm 0.015)\text{ eV}$. Trotz der Diskrepanz zu Tracermethodenmessungen wurde wegen der Übereinstimmung mit theoretischen Rechnungen nach Wynblatt und Messungen von Manintveld zunächst die Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne der Diffusion von Doppelfehlstellen zugeschrieben.

Eine genauere Betrachtung des Zeitverhaltens der Konzentration an Divacancies - unter der Voraussetzung $E_{2\text{v}}^M = 0.268\text{ eV}$ - führte die obige Hypothese zum Widerspruch. Es gelang auch mit anderen Modellen nicht, den gemessenen Verlauf der Relaxation des Alignements unter der Annahme eines einzigen Mechanismus zu erklären.

Die Hypothese einer Relaxation über zwei verschiedene Mechanismen lieferte über einen weiteren Fit 2 Wanderungsenergien: $E_I^M = (1.2 \pm 0.8) \text{ eV}$ und $E_{II}^M = (0.216 \pm 0.020) \text{ eV}$.

Unter dieser Annahme konnten die experimentellen Ergebnisse im gesamten untersuchten Temperaturbereich von 400 bis 1300° K erklärt werden.

Für die beiden Mechanismen I und II kommen jeweils zwei Modelle in Frage, zwischen denen vom Experiment her keine Möglichkeit zur Entscheidung geliefert wird.

	Seite
I. EINLEITUNG	1
II. THEORETISCHE BETRACHTUNGEN ZUR MESSMETHODE	2
1. Alignment und Winkelverteilung der Intensität der γ -Strahlung	2
2. Statische magnetische Wechselwirkung - Spinrotation	3
3. Theorie von Abragam und Pound - Kombinierte statische magnetische und fluktuierende elektrische Quadrupol-Wechselwirkung	4
4. Stroboskopische Beobachtungsweise der Spinrotation	10
III. EIGENSCHAFTEN DES SONDENKERNS	13
IV. EXPERIMENTELLE ANORDNUNG	14
1. Pulsung und Strahlführung	14
2. Targetkonstruktion, Temperaturmessung, Magnetfeldmessung	17
3. Stroboskopieelektronik	19
V. EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE	21
1. Stroboskopiemessung in Abhängigkeit vom Magnetfeld B bei vier verschiedenen Temperaturen	21
2. Messung der Stroboskopieresonanzamplitude in Abhängigkeit von der Temperatur T bei der Resonanzfeldstärke H_0	23
VI. DISKUSSION DER MESSERGEBNISSE	24
1. Diffusionsmechanismen in metallischen Festkörpern mit f.c.c. Struktur	24
2. Strahlenschäden im Kristall	27
3. Die Kristallkonfigurationsänderungsfrequenz Ω_{tot} bei thermischem Gleichgewicht und bei Existenz von Strahlenschäden	30
4. Erklärung des Temperaturverlaufs der Relaxation des Alignements durch Fehlstellendiffusion	33
5. Ansatz zu einer Erklärung der experimentellen Daten	35
6. Das Problem der Zeitabhängigkeit von G_{irr}	37
7. Annahme einer nur kurz nach der Anregung wirkenden elektrischen Quadrupolwechselwirkung	41
8. Modell der Diffusion des Cd^{*} innerhalb von Agglomeraten	42
9. Relaxation des Alignements der $^{109}Cd^{*}$ durch Diffusion auf inneren Oberflächen	44
10. Relaxation bei Annahme von 2 Mechanismen	45
11. Interpretation der Mechanismen I und II	48
12. Die Quadrupolwechselwirkungsfrequenz und die Gültigkeit der Theorie von Abragam und Pound bei den verschiedenen Modellen	50
VII. SCHLUSSBEMERKUNG	52

Herrn Prof. Dr. H. Wegener danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit an seinem Institut ausführen zu können, und für die Diskussionen, die ich mit ihm führen konnte.

Meinen Kollegen, den Herren Dr. E. Jaeschke, Dipl. Phys. D. Bloch, Dipl. Phys. D. Frosch, cand. phys. F. Gundelfinger und Stud. Ref. H. Pauli, möchte ich für die immer gute Zusammenarbeit und ihren großen persönlichen Einsatz bei der Durchführung der Strahlzeiten, der die Messungen dieser Arbeit ermöglicht hat, ganz herzlich danken.

I. E I N L E I T U N G

Bei der Messung des g-Faktors des 469 keV, $\frac{11^-}{2}$ Niveaus im ^{109}Cd über Spinrotations- ($\hat{=}$ zeitlich differentielle Messung gestörter Winkelkorrelation) und Stroboskopiemessungen mit dem gepulsten Protonenstrahl des Erlanger Tandem-Van-de-Graaff-Beschleunigers nach einer (p,n) Reaktion am ^{109}Ag stellt man fest, daß bei flüssigem Target eine deutlich von Null verschiedene Modulationsamplitude vorliegt, die mit abnehmender Temperatur immer stärker gedämpft wird. Bei Zimmertemperatur ist überhaupt keine Modulationsamplitude mehr festzustellen.

Aufgabe dieser Arbeit war es, die Abnahme des Alignements in Abhängigkeit von der Targettemperatur und ihren Zusammenhang mit Festkörpereigenschaften - wie inneren elektrischen Feldgradienten und Wanderungsaktivierungsenergien - näher zu untersuchen.

In Kapitel II wird zunächst auf die Form der Winkelverteilung der Intensität der beim Zerfall eines durch eine Reaktion angeregten Kernniveaus ausgesandten γ -Strahlung eingegangen - und zwar sowohl beim Vorhandensein eines statischen äußeren Magnetfeldes allein als auch bei gleichzeitiger Existenz eines konstanten externen Magnetfeldes und einer fluktuierenden elektrischen Quadrupolwechselwirkung - und dann die Meßmethode der Stroboskopie kurz beschrieben. Kapitel III beschreibt das Kernniveau, an dem mit der in IV dargelegten experimentellen Anordnung die in V aufgeführten Messungen gemacht wurden. In Kapitel VI folgt eine Interpretation und Diskussion der Messungen unter Annahme einer zusätzlich zu dem extern angelegten Magnetfeld wirkenden fluktuierenden elektrischen Quadrupolwechselwirkung.

II. THEORETISCHE BETRACHTUNGEN

ZUR MESSMETHODE

1. Alignement und Winkelverteilung der Intensität der γ - Strahlung

Der bei einer Kernreaktion vom Geschöß auf den Targetkern übertragene Bahndrehimpuls steht senkrecht auf der Richtung des einfallenden Teilchenstrahls (Abb. 1). Bei Wahl der Teilchenstrahlachse als Quantisierungsachse bedeutet dies, daß die angeregten Kerne bevorzugt mit kleinen m - Quantenzahlen gebildet werden. Das heißt aber: das Ensemble der angeregten Kerne besitzt ein Alignement.

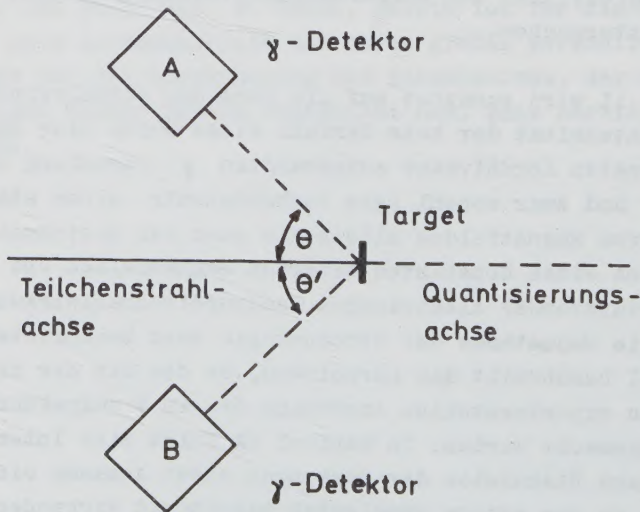


Abb. 1: Geometrie der Strahl-Zähler-Ebene bei Stroboskopiemessungen

Für die Winkelverteilung der Intensität der dieses Niveau entvölkernden γ -Strahlung gilt:

$$W(\theta) = \sum_{k \text{ gerade}} A_{kk} \cdot P_k(\cos \theta)$$

mit: $A_{kk} = A_k(\alpha) \cdot A_k(\gamma)$

θ = Winkel zwischen Strahlachse und Beobachtungsrichtung

P_k = Legendrepolynome

$A_k(\alpha)$ beschreibt das Alignment und hängt von der Kernreaktion α ab.

$A_k(\gamma)$ wird durch die Spins von Anfangs- und Endzustand und durch die Multipolarität des γ -Übergangs bestimmt

2. Statische magnetische Wechselwirkung - Spinrotation

Legt man senkrecht zur Strahl - Zählerebene ein konstantes Magnetfeld $\mathbf{B}$ an, so wird bei einem endlichen magnetischen Dipolmoment des Kernels im angeregten Zustand die Winkelverteilung gestört und abhängig von der Zeit t . Das Ensemble der ausgerichteten Kerne präzediert dann mit der Larmorfrequenz ω_L um die Richtung des angelegten Magnetfeldes $\mathbf{B}$ und es gilt:

$$\vec{\omega}_L = -\frac{1}{\hbar} \cdot \mu_k \cdot g \cdot \vec{B}$$

mit μ_k = Kernmagneton
 g = g - Faktor

Die Winkelverteilung der γ -Strahlung nimmt dann die folgende Gestalt an:

$$W(\theta, t, B) = \sum_{k=0, k \text{ gerade}}^{k_{\max}} A_k(\alpha) \cdot A_k(\gamma) \cdot P_k(\cos\{\theta - \omega_L t\})$$

Nimmt man an - und im hier beschriebenen Experiment wurde dies getan -, daß für $k > 2$ die Faktoren $A_k(\alpha) \cdot A_k(\gamma)$ sehr klein sind und gegen den Term mit $k = 2$ vernachlässigt werden können, so folgt:

$$W(\theta, t, B) = 1 + b_2 \cdot \cos\{2 \cdot (\theta - \omega_L t)\}$$

$$\text{mit: } b_2 = \frac{3 \cdot A_2(\alpha) \cdot A_2(\gamma)}{4 + A_2(\alpha) \cdot A_2(\gamma)}$$

Mißt man zeitlich differentiell mit einem gepulsten Strahl, so erhält man als beobachtbare γ -Intensität bei festem Winkel θ zur Zeit t :

$$I(\theta, t, B) = I_0 \cdot \exp\left\{-\frac{t}{\tau_N}\right\} \cdot \left[1 + b_2 \cdot \cos\{2(\theta - \omega_L t)\}\right]$$

wobei τ_N die Lebensdauer des zerfallenden Niveaus ist.

3. Theorie von Abragam und Pound - Kombinierte statische magnetische und fluktuierende elektrische Quadrupolwechselwirkung

Tritt zu dem extern angelegten statischen Magnetfeld B eine fluktuierende Wechselwirkung $K(t)$ hinzu, so nimmt die Winkelverteilung die folgende Gestalt an:

$$W(\theta, t, B, K(t)) = \sum_{k_1, k_2} A_{k_1}(\alpha) \cdot A_{k_2}(\gamma) \cdot G_{k_1 k_2}(K(t)) \cdot P_{k_2}(\cos\{\theta - \omega_L t\})$$

Die Theorie wurde erstmals von Abragam und Pound [AbP 53] entwickelt und ist dann von vielen Autoren weiter behandelt worden. Das Folgende hält sich an einen Artikel von Steffen und Frauenfelder [StF 64].

Der Faktor $G_{k_1 k_2}(K(t))$ enthält die zusätzliche Wechselwirkung $K(t)$ und ergibt sich zu:

$$G_{k_1 k_2}(K(t)) = \sum_{m, m'} (-)^{2I + m + m'} (2k_1 + 1)^{1/2} (2k_2 + 1)^{1/2} \cdot \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m & -m & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m' & -m' & 0 \end{pmatrix} \cdot W_{mm'}(t)$$

$W_{mm'}(t) = |\langle m' | K(t) | m \rangle|^2$ ist die Wahrscheinlichkeit, daß ein Kern auf Grund der Störung $K(t)$ zur Zeit t im Zustand $|m'\rangle$ ist, wenn er zur Zeit $t = 0$ im Zustand $|m\rangle$ war. Aufgabe der Theorie der zeitabhängigen Störungen ist nun die Berechnung von $W_{mm'}(t)$.

Zunächst berechnet man durch Störungsrechnung die Übergangswahrscheinlichkeit $Q_{mm'}(t)$ für den Übergang des Zustands $|m\rangle$ in den Zustand $|m'\rangle$ unter der Voraussetzung: für $t = 0$ ist nur $|m\rangle$ besetzt, zu:

$$Q_{mm'}(t) = \frac{1}{\hbar^2} \cdot \int_0^t \langle m' | K(t') | m \rangle \langle m' | K(t) | m \rangle^* \exp\{i\omega_{mm'}(t-t')\} dt' + \text{konj.komplex.}$$

Die verwendeten Eigenfunktionen $|m\rangle$ und die Energieeigenwerte E_m sind die des ungestörten Systems, das heißt bei abgeschalteter Wechselwirkung $K(t)$, und $\omega_{mm'} = \frac{1}{\hbar} \cdot (E_m - E_{m'}) = \omega_L \cdot (m - m')$.

Da $K(t)$ statistisch fluktuiert, ist nicht $Q_{mm'}(t)$ bei der Behandlung des vorliegenden Problems interessant sondern der Ensemblemittelwert $\overline{Q_{mm'}(t)}$ aller Kerne, die sich zur

Zeit $t = 0$ im Zustand $|m\rangle$ befanden.

Weil nun $K(t)$ ein statistisch fluktuierender Operator ist, sind seine Matrixelemente $k_{mm'}(t) = \langle m' | K(t) | m \rangle$ skalare "random functions" der Zeit t .

Wir definieren nun als Korrelationsfunktion $G_{mm'}(t, t')$

$$G_{mm'}(t, t') = \overline{k_{mm'}(t) \cdot k_{mm'}^*(t')}$$

Für ein stationäres Ensemble gilt dann: $G_{mm'}$ hängt nicht von der Wahl des Zeitnullpunktes sondern nur von $\tau = (t - t')$ ab, so daß folgt:

$$G_{mm'}(t, t') = G_{mm'}(t - t') = G_{mm'}(\tau) = G_{mm'}(0) \cdot f(\tau)$$

$$\text{mit } G_{mm'}(0) = \overline{|\langle m' | K(0) | m \rangle|^2}$$

Allgemeine Eigenschaften von $f(\tau)$ sind ferner [Abr 61] :

$f(\tau = 0) = 1$; $f(\tau \rightarrow \infty) = 0$; $f(\tau)$ nimmt mit wachsendem τ sehr schnell ab; $f(\tau)$ ist reell und eine gerade Funktion von τ .

Mit obigen Eigenschaften von $f(\tau)$ ergibt sich:

$$\begin{aligned} \overline{Q_{mm'}(t)} &= \frac{1}{\hbar^2} \cdot \int_0^t G(0) \cdot f(\tau) \cdot \exp\{-i\omega_{mm'}\tau\} d\tau + \text{konj.kompl.} \\ &= \frac{2}{\hbar^2} \cdot G(0) \cdot \int_0^t f(\tau) \cdot \cos\{\omega_{mm'}\tau\} d\tau \end{aligned}$$

Setzt man nun voraus, daß für den Beobachtungszeitpunkt t die Funktion $f(\tau)$ schon längst nahezu gleich Null ist, so kann die obige Integrationsgrenze t gegen ∞ hinausgeschoben

werden und $\overline{Q_{mm}}$ wird zeitunabhängig.

Definiert man nun eine Korrelationszeit $\tau_{c_{mm}}$ zu:

$$\tau_{c_{mm}} = \int_0^{\infty} f(\tau) \cdot \cos(\omega_{mm} \tau) d\tau$$

so erhält man:

$$\overline{Q_{mm}} = \frac{2}{\hbar^2} \cdot G_{mm}(0) \cdot \tau_{c_{mm}}$$

Gilt nun $(\omega_{mm} \tau_{c_{mm}}) \ll 1$, so kann für $\tau \leq \tau_{c_{mm}}$ der

Kosinus unter dem Integral durch 1 ersetzt werden, für

$\tau \gg \tau_{c_{mm}}$ wird aber $f(\tau)$ so klein sein, daß praktisch

kein Beitrag mehr zum Integral geliefert wird. Das heißt

aber: die Korrelationszeiten $\tau_{c_{mm}}$ werden unabhängig von

m und m' und können durch eine einzige Größe τ_c ersetzt werden.

Damit gilt dann:

$$\overline{Q_{mm}} = \frac{2}{\hbar^2} \cdot G_{mm}(0) \cdot \tau_c$$

Für den Spezialfall, daß $K(t)$ die Wechselwirkung eines kern-quadrupolmomentes Q mit einem fluktuierenden elektrischen Feldgradienten $V_{z'z'}$ ist, erhält man:

$$|\langle m' | K(0) | m \rangle|^2 = b^2 \cdot \left(-\frac{1}{m'} \cdot \frac{2}{q} \cdot \frac{1}{m} \right)^2$$

$$\text{mit } b^2 = \frac{1}{80} \cdot \frac{(I+1)(2I+3)(2I+1)}{I(2I-1)} (e Q)^2 \cdot \overline{V_{z'z'}^2}$$

Damit ergibt sich:

$$\overline{Q_{mm}} = \frac{2 \tau_c}{\hbar^2} \cdot b^2 \cdot \left(-\frac{1}{m'} \cdot \frac{2}{q} \cdot \frac{1}{m} \right)^2$$

Für die Besetzungswahrscheinlichkeiten $P_m(t)$ gilt eine "master"-Gleichung

$$\frac{d P_m}{dt} = \sum_m (\overline{Q_{m' m}} \cdot P_{m'} - \overline{Q_{m m'}} \cdot P_m)$$

Wegen $\overline{Q_{mm'}} = \overline{Q_{m'm}}$ und den Orthogonalitätsrelationen für die $3j$ -Symbole erhält man bei Voraussetzung eines zeitlich konstanten τ_c mit dem Ansatz

$P_m(t) = P_m(0) \cdot \exp \{-\lambda t\}$ ein $(2I + 1)$ dimensionales Gleichungssystem für die $P_m(0)$.

Inversion dieses Gleichungssystems liefert die Besetzungswahrscheinlichkeiten $P_m(t)$ und damit $W_{mm'}(t)$ zu:

$$W_{mm'}(t) = P_{m'}(t) = \sum_r (-)^{-2I-m-m'} (2r+1) * \\ * \begin{pmatrix} I & r & I \\ m & 0 & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & r & I \\ m' & 0 & -m' \end{pmatrix} \exp \{-\lambda_r \cdot t\}$$

Einsetzen von $W_{mm'}(t)$ in die Formel für $G_{k_1 k_2}(t)$ liefert bei Ausführung der Summen über m und m' wegen der Orthogonalität der $3j$ -Symbole einen Faktor $\delta_{k_1 r} \cdot \delta_{k_2 r} = \delta_{k_1 k_2}$ und somit den gesuchten Abschwächungsfaktor

$G_{k_1 k_2}(t)$ zu:

$$G_{k_1 k_2}(t) = \delta_{k_1 k_2} \cdot G_{k_1}(t) \quad \text{mit } G_{k_1}(t) = \exp \{-\lambda_{k_1} \cdot t\}$$

Mit $k_1 = k_2 = k$ ergibt sich die Winkelverteilung der Intensität der γ -Strahlung zu:

$$W(\theta, t, B, K(t)) = \sum_k A_k(\alpha) \cdot A_k(\gamma) \cdot G_k(t) \cdot P_k(\cos \{\theta - \omega_L t\})$$

mit: $G_k(t) = \exp \{-\lambda_k t\}$

$$\lambda_k = \frac{3}{80} \tau_c \cdot \left(\frac{eQ}{h}\right)^2 \cdot \overline{v_{z',z'}^2} \cdot \frac{k(k+1)[4I(I+1)-k(k+1)-1]}{I^2 \cdot (2I-1)^2}$$

Das heißt aber:

Durch die zu der statischen magnetischen Wechselwirkung hinzutretende fluktuierende elektrische Quadrupolwechselwirkung wird das Alignment der angeregten Kerne exponentiell abgeschwächt. Mißt man zeitlich differentiell, so äußert sich dies als exponentielle Dämpfung der durch die magnetische Wechselwirkung hervorgerufenen Modulation der γ -Intensität.

Vernachlässigt man wiederum die Terme mit $k > 2$, so ergibt sich die zeitliche Veränderung der γ -Winkelverteilung zu:

$$W(\theta, t, B, \lambda_2) = 1 + A_2(\kappa) \cdot A_2(\gamma) \cdot \exp\{-\lambda_2 t\} \cdot P_2(\cos\{\theta - \omega_L t\})$$

Die Anwendbarkeit der hier dargestellten Theorie von Abraham und Pound wird durch folgende Bedingungen eingeschränkt:

$$\begin{aligned} \alpha.) \quad \tau_c / \tau_N &\ll 1 \\ \beta.) \quad \overline{\omega_Q} \cdot \tau_c &\ll 1 \\ \gamma.) \quad \omega_L \cdot \tau_c &\ll 1 \end{aligned}$$

Wobei τ_N = Lebensdauer des angeregten Niveaus
 τ_c = Korrelationszeit
 ω_L = Larmorfrequenz
 $\overline{\omega_Q}$ = mittlere Quadrupolwechselwirkungsfrequenz

Die Bedingung $\alpha.)$ macht eine Aussage über die Zeitabhängigkeit der Störwechselwirkung. Sie bedeutet, daß während Zeiten der Größenordnung τ_N der Feldgradient $V_{z'z'}$ sehr oft seine Richtung ändert.

Die Einschränkung $\beta.)$ besagt, daß jede einzelne Phasenänderung der Larmormodulation auf Grund der Quadrupolstörung dem Betrage nach sehr klein ist und die Forderung $\gamma.)$ gibt an, daß sich auch während einer Larmorperiode T_L die durch die Störwechselwirkung hervorgerufenen Phasenänderungen der Larmormodulation sehr oft ändern.

4. Stroboskopische Beobachtungsweise der Spinrotation

regt man die Kerne mit einem gepulsten Strahl an, so kann man neben der Methode der Spinrotation auch die stroboskopische Beobachtungsweise der Larmorpräzession als Meßprinzip bei der Untersuchung gestörter γ -Winkelkorrelationen wählen.

Bei Spinrotationsmessungen setzt man voraus, daß die Lebensdauer τ_N des angeregten Niveaus sehr viel kleiner als die Pulsfolgezeit T_0 ist.

Bei der Stroboskopie [CMR 68] gilt dagegen die Voraussetzung $T_0 \ll \tau_N$. Das bedeutet: Die von einem Strahlpuls erzeugte Aktivität wird auch noch in den folgenden Pulsfolgezeiten zur γ -Intensität beitragen.

Erfüllt man die Bedingung $T_0 = \frac{n\tau}{\omega_L}$, so aktiviert man synchron zum Nulldurchgang der Larmorpräzession, und die Modulationen der exponentiellen Abfälle überlagern sich phasenrichtig (siehe Abb. 2). Das bedeutet eine resonanzartige Verstärkung des Effektes.

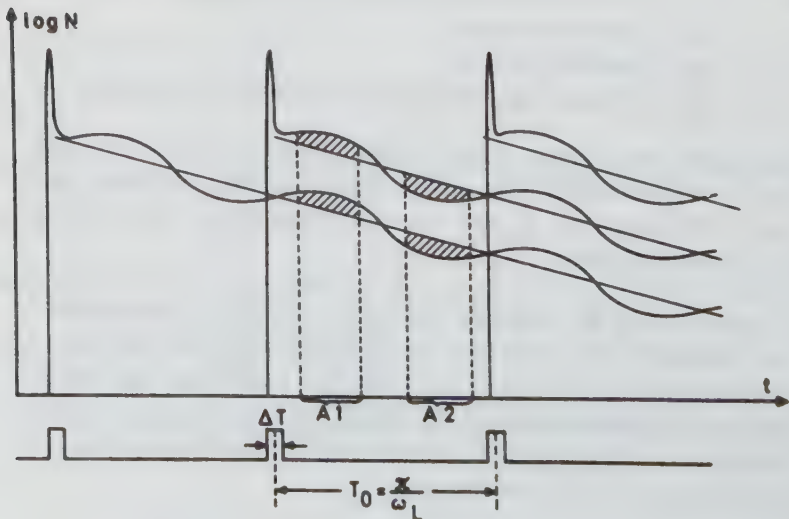


Abb. 2: Intensitätsüberlagerung bei $n = 1$ - Stroboskopie [CMR 68]

Man mißt mit zwei unter 90° zueinander stehenden Detektoren und registriert nur Ereignisse, die in die speziell gewählten Zeitfenster A 1 und B 2 im Maximum und A 2 und B 1 im Minimum der Modulation fallen. Das Doppelverhältnis

$$Q = \frac{N(A\ 1)}{N(A\ 2)} \cdot \frac{N(B\ 2)}{N(B\ 1)}$$
 liefert in Abhängigkeit vom angeleg-

ten Magnetfeld eine Funktion mit Resonanzverhalten und zwar für $T_0 \ll \tau_N$ eine Lorentzkurve.

Die Breite dieser Kurve ist wegen der endlichen Lebensdauer τ_N des untersuchten Niveaus und dem zusätzlich durch die hinzutretende Quadrupolwechselwirkung exponentiell mit der Relaxationskonstante $\lambda_{\text{Rel}} = T_{\text{Rel}}^{-1}$ gedämpften Alignment gegeben zu:

$$\frac{\Delta B}{B} = \frac{T_0}{n\pi} \cdot (\tau_N^{-1} + T_{\text{Rel}}^{-1}) = \frac{T_0}{n\pi} \cdot (\tau_N^{-1} + \lambda_{\text{Rel}})$$

Die Resonanzamplitude ist gegeben durch:

$$R = R_0 \cdot G(\lambda_{\text{Rel}})$$

mit R_0 = Resonanzamplitude ohne Quadrupolwechselwirkung

$$G(\lambda_{\text{Rel}}) = \text{Abschwächungsfaktor} = \frac{1}{1 + \frac{\tau_N \cdot \lambda_{\text{Rel}}}{1 + \frac{1}{4} A_2(\tau) \cdot A_2(\tau)}}$$

Auf die Resonanzkurve der Stroboskopie wirkt daher die exponentielle Dämpfung des der Lebensdauer aufgeprägten Sinus als Verbreiterung der Stroboskopieline und Abschwächung ihrer Resonanzamplitude.

Der Abschwächungsexponent λ_{Rel} ist nun nach Abragam der Korrelationszeit τ_c proportional, die wiederum eine Funktion der Targettemperatur ist.

Will man nun untersuchen, ob die Relaxation des Alignements

über die in der Abragam - Poundschen Theorie angenommene
Quadrupolwechselwirkung verläuft, so muß man die Zerstörung
des Alignements in Abhängigkeit von der Temperatur T beobach-
ten. Dazu genügt es, jeweils bei fester Temperatur die Reso-
nanzamplitude $R = R_0 \cdot G(T)$ zu bestimmen

III. EIGENSCHAFTEN DES SONDENKERN S

Die Abbildung 3 zeigt einen Teil der Niveauschemata von ^{109}Ag und ^{109}Cd .

Das isomere Niveau bei 469 keV im ^{109}Cd zerfällt mit einer Halbwertsbreite von $(8.9 \pm 0.6) \mu\text{sec}$ über eine $M2 - M1$ - Kaskade. Die $M2$ γ -Strahlung von 263 keV wurde mit $1.5 \times 1.0''$ NaJ(Tl) Szintillatoren und 56 DVP Photomultipliern nachgewiesen. Das Niveau besitzt einen Spin von $11/2$, negative Parität und einen g -Faktor von $g = -(0.1982 \pm 0.0004)$

[Jae 70], [BFJ 70], [KMB 61], [MCC 65], [MCC 66]].

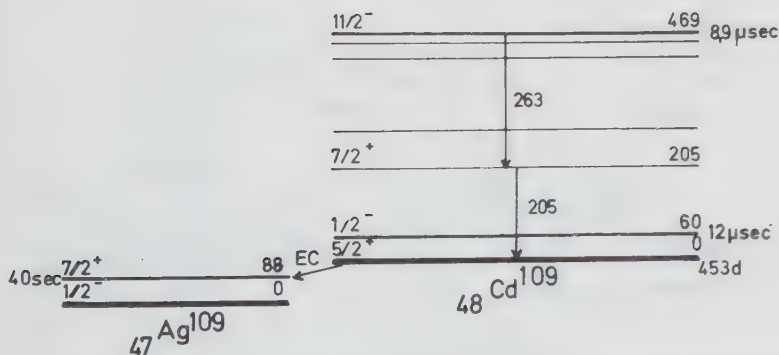


Abb. 3: Teil der Niveauschemata von ^{109}Ag und ^{109}Cd
[LHP 68], [Jae 70]

IV. EXPERIMENTELLE ANORDNUNG

1. Pulsung und Strahlführung

Das verwendete Pulsungssystem - siehe Abbildung 4 - gestattet die Erzeugung von Strahlpulsen mit einem Pulsabstand von 1 μ sec bis 1 msec bei einer minimalen Pulsbreite von 70 nsec [Bfr 70].

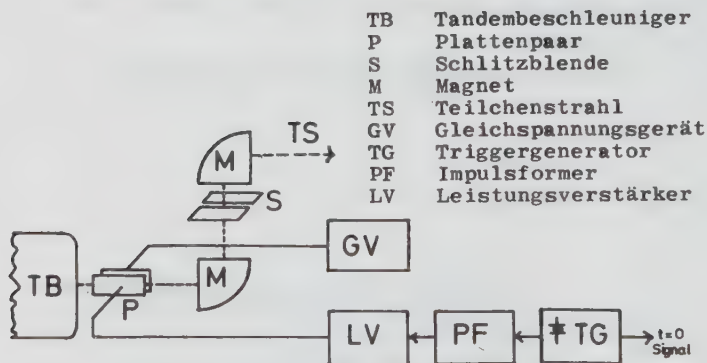


Abb. 4: Schematische Darstellung des verwendeten Pulsungssystems [Jae 70]

Es besteht aus einem quarzgesteuerten Triggerelement TG, einer Impulsformerstufe PF ⁺⁾ und einem Impulsleistungsverstärker LV, der auf Ablenkplatten P am Hochenergieende des Erlanger Tandem-Van-De-Graaff Beschleunigers TB arbeitet.

⁺⁾ Impulsgenerator: Typ Hewlett - Packard 8002 A

Am Triggeregenerator TG können die Pulsfolgezeiten T_0 digital in Schritten von 1 μsec eingestellt werden. Die Pulsbreite ΔT_0 kann an der Impulsformerstufe PF kontinuierlich gewählt werden.

Das $t = 0$ Signal für die Zeitmessungen wird von der Triggerstufe TG abgeleitet und kann noch um den Faktor 2 bzw. 4 untersetzt werden. Die Ableitung des Zeitnullpunktsignals ist in dieser Art erlaubt, da bei den im μsec -Bereich gewählten Pulsungsdaten Eintreffzeitschwankungen auf Grund der verschiedenen Flugzeiten der einzelnen Protonen auf ihren unterschiedlichen Flugbahnen in den Magneten des Analysiersystems des Beschleunigers von der Größenordnung 5 nsec sind und daher vernachlässigt werden können.

Der gepulste Protonenstrahl ($E_p = 10 \text{ MeV}$, $T_0 = 4,000 \mu\text{sec}$, $\Delta T_0 = 0.150 \mu\text{sec}$) wurde durch ein Blendensystem aus einer kontinuierlich variablen^{+) und einer festen Blende ($\varnothing = 4 \text{ mm}$) hindurch auf das Target fokussiert (siehe Abbildung 5)}

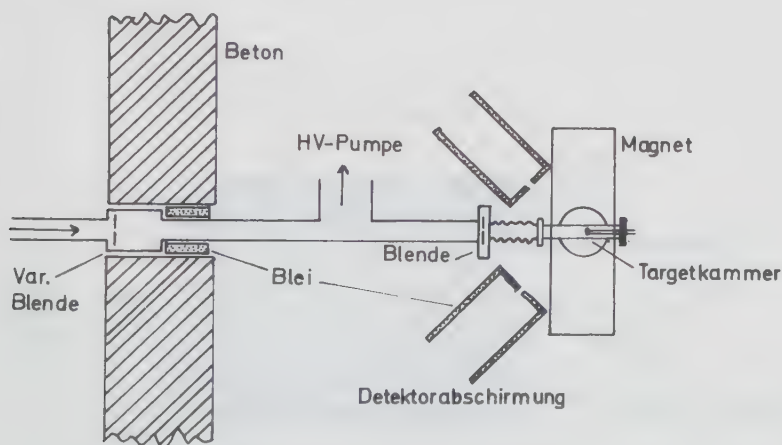


Abb. 5: Strahlführung und Targetaufbau [Jae 70]

^{+) Hahn Meitner Institut, Berlin}

Der Brennfleck auf dem Target hatte einen Durchmesser von ca. 4 mm. Der mittlere Targetstrom betrug bis zu 20 nA.

Da durch das Auftreffen eines Teils der Protonen auf die Variable Blende eine erhebliche n - und γ -Untergrundstrahlung auftrat, wurde zwischen dieser Blende und dem eigentlichen Meßplatz eine Abschirmwand aus Blei und Beton aufgebaut.

Außerdem wurden die Zähler auch gegen die an der festen Blende erzeugte und die von der Masse des Magnetjochs zurückgestreute γ -Strahlung durch zylindrische Bleihülsen abgeschirmt.

2. Targetkonstruktion, Temperaturmessung, Magnetfeldmessung

Den eigentlichen Targetaufbau zeigt Abbildung 6. Der Targetofen enthält natürliches Silber (99.9 %). Er besteht aus zwei ineinandergeschobenen Quarzrohren, zwischen die eine bifilare Heizwicklung aus Tantaldraht ($\varnothing = 0.7 \text{ mm}$) geschoben ist. Um die Wärmeabstrahlung gering zu halten, ist das äußere Rohr von einem Tantal - Reflektor umgeben. Das Eintrittsfenster des Strahls besteht aus einer 2μ dicken Tantal - Folie (3.3 mg/cm^2), in der 10 MeV Protonen nur 60 keV ihrer Energie verlieren [Wha 57].

Die Rückseite des Ofens ist durch einen Tantal - Block abgeschlossen, der das Thermoelement trägt. Tantal wurde bevorzugt verwendet, da es bei der Temperatur des flüssigen Silbers nicht mit diesem legiert.

Das Thermoelement ist ein Chromnickel-Nickel Thermopaar mit Stahlmantel⁺⁾ . Zum Schutz gegen Ablegieren ist der Meßkopf des Thermoelements in einem kleinen Stahlzylinder isoliert angebracht.

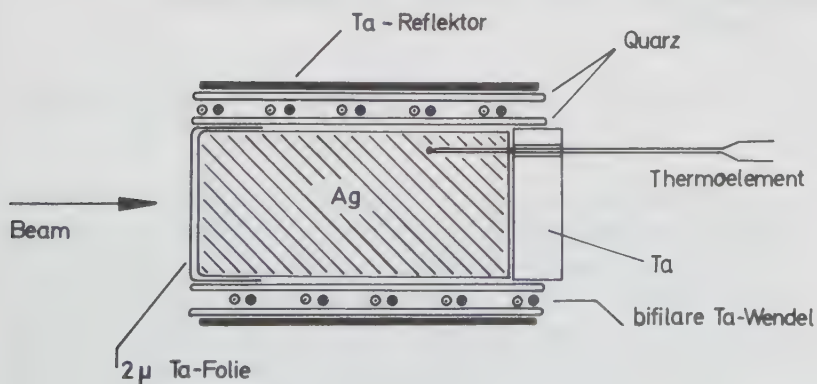


Abb. 6: Schematische Darstellung des Targetofens [Jue 70]

+) Firma Philips Industrie Elektronik GmbH: Thermocoax
Typ 2 AB - I 20

Auf Grund der Schmelzwärme war der Schmelzpunkt des Targetmaterials auf $\pm 10^{\circ} \text{C}$ genau bestimmbar, so daß die Temperaturmessung an den bekannten Schmelzpunkt von Silber angehängt werden konnte. Die Genauigkeit der Temperaturmessung ist daher $\pm 10^{\circ} \text{C}$.

Der Ofen ist auf einen 2" HVEC Normflansch montiert, der die Rückseite der eigentlichen Targetkammer abschließt. Diese besteht aus einem 30 cm langen Duranglasrohr von 40 mm Durchmesser und ist mittels einer O-Ring Quetschkupplung an das 2" Strahlrohr der "Extension" angeschlossen. Ein Hochvakuumpumpestand⁺⁾ sorgte für ein Vakuum $< 1,0 \cdot 10^{-5}$ Torr.

Die Targetkammer war zwischen die Polkerne eines Doppellochelektromagneten⁺⁺⁾ montiert. Der Abstand der Polkerne betrug 6 cm. Die Feldhomogenität bei diesem Abstand ist in einem zylindrischen Volumen von 10 cm Durchmesser $\Delta B/B \leq 10^{-4}$. Das Magnetfeld wurde mit einem Kernresonanzmagnetfeldmeßgerät⁺⁺⁺⁾ gemessen. Aus der Güte des Resonanzsignals bei mehreren Kontrollmessungen konnte $\Delta B/B < 10^{-3}$ als sicher erreicht angenommen werden.

+) Firma Leybild - Heraeus: D I 1000

++) Firma Bruker Physik, Karlsruhe: Typ BE 20 - C 8

+++) Firma AEG, Frequenzzähler: Firma Hewlett-Packard
Typ 5245 L

etwa $1/4$ Länge der Modulationsperiode bei

$$t = \frac{5}{8} T_0 \text{ und } t = \frac{7}{8} T_0 \text{ abgeleitet.}$$

Diese werden mit den energieselektierten schnellen Anodensignalen in 4 Koinzidenzstufen zur Koinzidenz gebracht. An jede Stufe ist ein Zähler gekoppelt, der die Ereignisse im entsprechenden Zeitfenster registriert. Ein Vorteil dieser Anordnung ist, daß keine Totzeit behafteten Geräte - wie TPC und VKA - verwendet werden.

Zugleich wurden für beide Zähler zeitverzögerte Energiespektren aufgenommen, aus denen das Verhältnis Linie zu Untergrund bestimmt werden konnte. Somit konnten Schwankungen des Untergrundes beim Messen der Resonanzamplitude bei den verschiedenen Temperaturen berücksichtigt werden.

V. EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE

Aufgabe dieser Arbeit war die Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne, die bei der Bestimmung des g - Faktors des 469 keV Niveaus im ^{109}Cd festgestellt wurde. Zu diesem Zweck wurden 2 Typen von Messungen durchgeführt.

1. Stroboskopiemessung in Abhängigkeit vom Magnetfeld B bei vier verschiedenen Temperaturen.

Abbildung 8 zeigt die Stroboskopieresonanzkurve in Abhängigkeit vom Magnetfeld B , bzw. der diesem proportionalen Protonenresonanzfrequenz bei vier verschiedenen Temperaturen.

- a.) bei $T_1 = 1270^\circ \text{ K}$, also über dem Schmelzpunkt von Ag
- b.) bei $T_2 = 1050^\circ \text{ K}$, $T_3 = 920^\circ \text{ K}$ und $T_4 = 795^\circ \text{ K}$, also im kristallisierten Zustand.

Das Magnetfeld wurde dabei so gewählt, daß im Resonanzfall gerade zwei Modulationsperioden in das Zeitintervall T_0 zwischen zwei Strahlpulsen paßten ($\hat{=} n = 2$ Stroboskopie).

Die durchgezogenen Kurven stellen eine mit dem modifizierten Programm "Datfit" [Wit 68] nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate angepaßte theoretische Funktion dar.

Im Rahmen der Fehler ist keine Verschiebung der Resonanzfrequenz zwischen der Messung im festen und flüssigen Zustand des Targetmaterials feststellbar. Die Resonanzamplitude nimmt mit sinkender Temperatur - wie erwartet - ab. Gleichlaufend nimmt die Resonanzbreite zu. Beim Übergang von 920° K zu 795° K scheint sich dagegen Resonanzamplitude

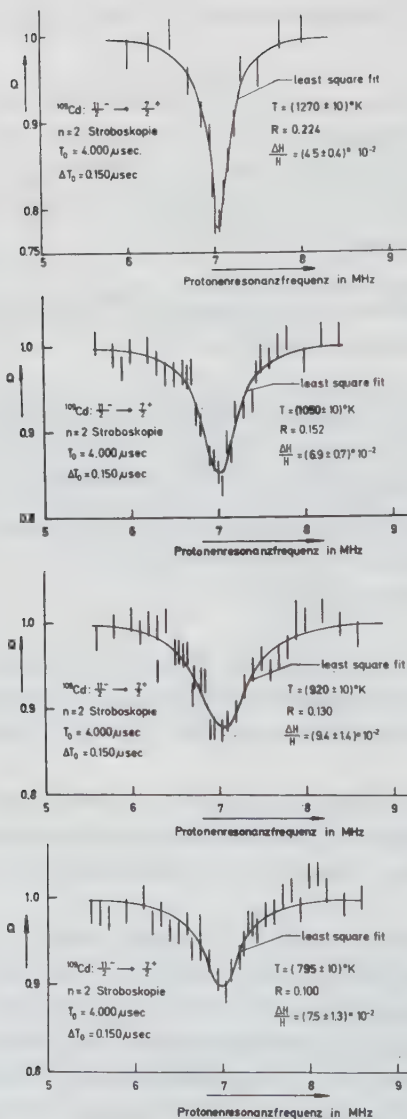


Abb. 8: Stroboskopiemesung in Abhängigkeit vom Magnetfeld B bei 4 verschiedenen Temperaturen.

und -Breite im Rahmen der Fehler praktisch nicht zu ändern. Im Kapitel VI.9 soll darauf näher eingegangen werden.

2. Messung der Stroboskopieresonanzamplitude in Abhängigkeit von der Temperatur T bei der Resonanzfeldstärke H_0 .

Abbildung 9 zeigt die Stroboskopieresonanzamplitude an der Stelle der Resonanzfeldstärke H_0 in Abhängigkeit von der Targettemperatur T normiert auf die Resonanzamplitude R_0 im flüssigen Zustand, d.h. den Abschwächungsfaktor $G(T)$. Ein "least square fit" der theoret. Funktion $R = R_0 \cdot G(T)$ an die experimentellen Daten liefert eine Wanderungsenergie E^M von

$E^M = (0.268 \pm 0.015) \text{ eV}$ und ein R_0 von

$R_0 = (0.152 \pm 0.003)$.

Eine genaue Diskussion wird in VI durchgeführt.

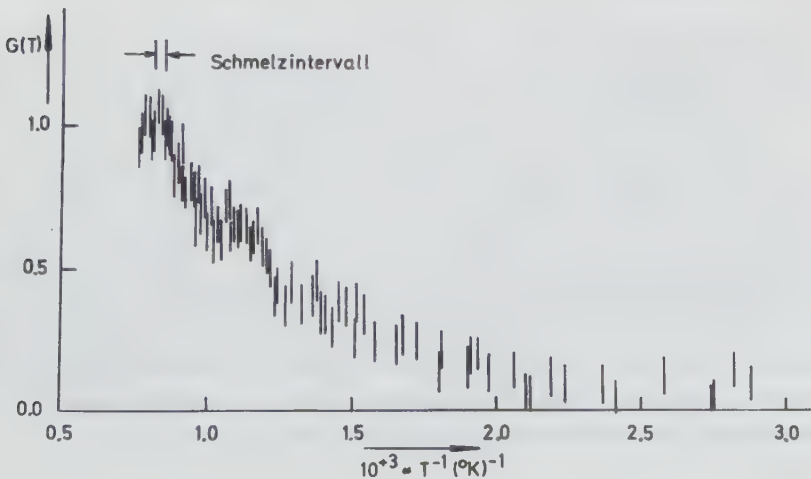


Abb. 9: Der Abschwächungsfaktor $G(T)$

VI DISKUSSION DER MESSERGEBNISSE

Bevor nun auf die Deutung der gemessenen Temperaturabhängigkeit der Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne eingegangen wird, sollen einige Bemerkungen über die Diffusion in f.c.c. Metallen, Strahlenschäden durch Protonenbeschuß im Ag-Kristall und die Konfigurationsänderungsfrequenz Ω^{tot} im thermischen Gleichgewicht und bei einem strahlengeschädigten Kristall gemacht werden. Daran wird sich eine genaue Analyse der Messung anschließen.

1. Diffusionsmechanismen in metallischen Festkörpern mit f.c.c. Struktur

Reale Kristalle zeigen keine ideale Gitterstruktur, sondern besitzen unbesetzte Gitterplätze und besetzte Zwischengitterplätze. Jedes Atom eines Kristalls sitzt aber an seinem Platz in einem Potentialminimum und ist durch Energiebarrieren von seinem Nachbarn getrennt. Damit ein Atom seinen Platz verlassen und diffundieren kann, ist eine bestimmte Energiebarriere E^B zu überwinden. Das Atom besitzt nun auf Grund der thermischen Bewegung um seine Ruhelage während eines Bruchteils der Gesamtzeit, der proportional zu $\exp\left\{-\frac{E^B}{kT}\right\}$ ist, diese zur Überwindung der Energiebarriere nötige Energie. Da das Wirtsgitter der in dieser Arbeit untersuchten $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne das f.c.c. Gitter des Ag ist, soll im Folgenden auf die Diffusionsmechanismen in solchen f.c.c. Kristallen eingegangen werden.

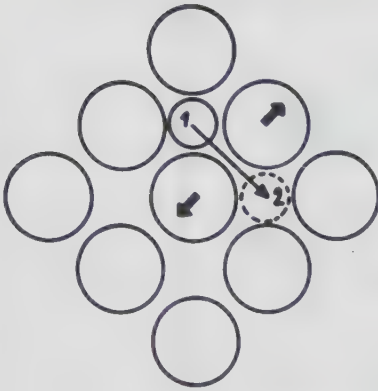


Abb. 10 a: Interstitial-
diffusion in der
(100) Ebene eines
f.c.c. Gitters
[She 63]

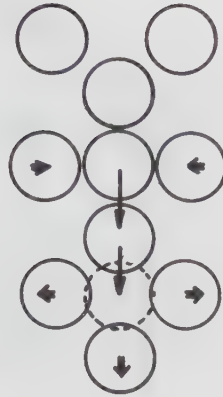


Abb. 10 b: Interstitial-
cyddiffusion
in der (100)
Ebene eines
f.c.c. Gitters
[She 63]

Abbildung 10 a zeigt den Weg eines Atoms vom Zwischengitterplatz 1 zum Zwischengitterplatz 2. Die zu überwindende Energiebarriere ist umso größer, je größer das Zwischengitteratom relativ zum regulären Gitteratom ist. Bei Abbildung 10 b schiebt ein Zwischengitteratom ein reguläres Atom auf einen benachbarten Zwischengitterplatz und nimmt selbst dessen regulären Platz ein. In beiden Fällen erfordert die Diffusion, anschaulich gesehen, eine große Verbiegung des vorgegebenen f.c.c. Gitters und die zu überwindende Energiebarriere wird sehr groß sein.

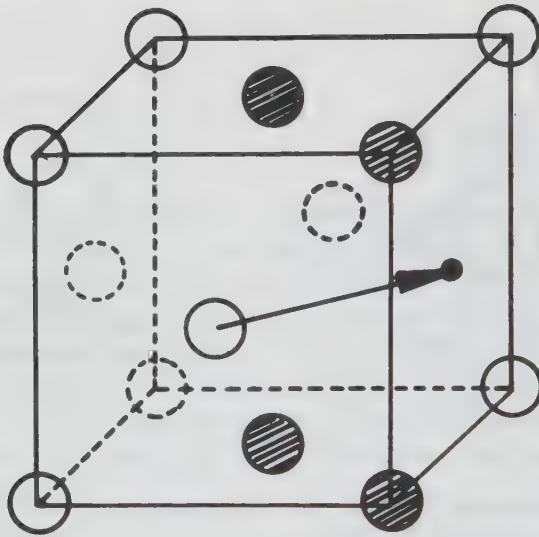


Abb. 11: Leerstellendiffusion in einem f.c.c. Gitter:
ein Atom wandert vom regulären Gitterplatz (101)
auf einen benachbarten freien Gitterplatz (211).
Die schraffierten 4 Atome müssen bei dieser Wan-
derung auseinandergedrückt werden, um das Atom
hindurchzulassen [She 63]

Abbildung 11 zeigt die Wanderung eines regulären Gitter-
atoms auf einen benachbarten unbesetzten Kristallplatz.
Die zu überwindende Energiebarriere wird in diesem Fall
wesentlich kleiner als bei der oben beschriebenen Inter-
stitialdiffusion sein.

In der Tat ist nach Shewmon [[She 63]p. 45] in f.c.c.
Metallen der dominierende Mechanismus der Selbstdiffu-
sion die Diffusion von Vacancies.

2. Strahlenschäden im Kristall

Beim Beschuß eines Ag-Targets mit hochenergetischen Protonen werden über die Reaktion $^{109}\text{Ag}(p,n)^{109}\text{Cd}^*$ die in dieser Arbeit beobachteten isomeren $^{109}\text{Cd}^*$ -Kerne erzeugt.

Man muß nun versuchen abzuschätzen, in welcher Kristallumgebung sich ein solcher $^{109}\text{Cd}^*$ -Kern zur Zeit der Entvölkerung seines isomeren Niveaus befindet. Das heißt aber, man müßte die Kristalldefekte kennen, die durch den mit hoher Geschwindigkeit durch den Kristall fliegenden $^{109}\text{Cd}^*$ -Kern hervorgerufen werden.

Im hier beschriebenen Experiment mußten wegen der sonst zu geringen γ -Ausbeute dicke Targets verwendet werden, in denen die einfallenden Protonen bis zur Ruhe abgebremst wurden.

Wegen des hohen benötigten Drehimpulsübertrags wurde die Geschosßenergie so hoch wie möglich und zwar zu $E_p = 10$ MeV gewählt. Da über die Wirkungsquerschnitte für die Anregung des 469 keV Niveaus im Cd nichts bekannt ist, kann man nur Abschätzungen darüber machen, mit welcher Anfangsgeschwindigkeit die $^{109}\text{Cd}^*$ zu ihrem Lauf durch das Gitter starten.

Ganz pauschal läßt sich auf Grund von Kinematikrechnungen [Hel 71] nur sagen, daß die $^{109}\text{Cd}^*$ auch bei Protonenenergien von 7 MeV noch in fast dem ganzen erlaubten Winkelbereich kinetische Energien $E_{\text{kin}}^{\text{Cd}}$ bis circa 300 keV erhalten. Im Mittel wird die Energie der isomeren Cd-Kerne rund 150 keV betragen.

Nach Chadderton [Cha 65] wechselwirken Teilchen mit kinetischen Energien

$$E < E_a = E_r \cdot 2 \cdot \frac{M_1 + M_2}{M_2} \cdot Z_1 \cdot Z_2 \cdot (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}$$

mit den Atomen des Kristalls so, wie wenn harte Kugeln mit energieabhängigem Radius $R(E)$ miteinander stoßen. Im vorliegenden Fall ist — mit $M_1 = M_{Cd}$, $M_2 = M_{Ag}$, $Z_1 = Z_{Cd}$, $Z_2 = Z_{Ag}$ und $E_r = \text{Rydbergenergie} = 13,6 \text{ eV}$ — $E_a = 680 \text{ keV}$ so daß der Energieverlust der $^{109}\text{Cd}^*$ durch Stöße von harten Kugeln vor sich geht.

Nach Seeger [See 55] kann die Wirkung eines solchen schnellen Teilchens räumlich unterteilt werden. Zunächst werden die durch Stöße geschaffenen Leerstellen und Zwischengitteratome so weit getrennt sein, daß immer noch die Mehrzahl der Gitteratome an ihrem Platz bleiben. Gegen Ende der Bahn werden wegen des Geschwindigkeitsverlustes der Cd^* Leerstellen und Zwischengitteratome in so großer räumlicher Dichte erzeugt, daß die Defekte nur noch wenige Atomabstände voneinander getrennt sind. Die damit verbundene Wärmeentwicklung reicht aus, um eine Umgebung des Bahnendpunktes weit über den Schmelzpunkt zu erhitzen. Ein solcher geschmolzener Bereich im Innern eines Festkörpers steht natürlich unter einem stark erhöhten hydrostatischen Druck, so daß der Schmelzpunkt höher als bei Atmosphärendruck liegen wird. Dies muß bei der Abschätzung der Größe der Schmelzzone berücksichtigt werden.

Ist nun die Rückstoßenergie E — unter Voraussetzung einer "displacement energy" $E_d \approx 25 \text{ eV}$ — größer als $E_A = 31 \text{ keV}$, so ist für Teilchen mit der Masse von Ag in Ag-Kristallen — also auch für $^{109}\text{Cd}^*$ — mit der Bildung einer Schmelzzone zu rechnen.

Zur Bestimmung der Größe der Schmelzzone nehmen wir nun an, daß die gesamte Energie E_A zum Erhitzen dieses Gebietes verwendet wird. Bei Atmosphärendruck beträgt die Schmelzwärme pro Atom $Q_s = 0,1$ bis $0,2$ eV. Wegen der Schmelzpunkterhöhung sei angenommen, daß $Q_s \approx 0,8$ bis $1,0$ eV beträgt. Dann enthält die Schmelzzone zwischen $3 \cdot 10^4$ und $4 \cdot 10^4$ Atome, was bei Annahme einer kugeligen Zone einen Durchmesser $2 R$ von $24,6$ bis $26,8$ Gitterkonstanten GK bedeutet. Experimentell haben 30 keV Ag-Atome in Ag-Metall eine Reichweite $R_{Ag} \approx 110 \text{ \AA} = 27 \text{ GK}$ [LSS 61], so daß die obige Annahme einer kugeligen Schmelzzone recht plausibel erscheint.

Zur Verteilung der Leerstellen und Zwischengitteratome im und um den Schmelzbereich läßt sich auf folgende Weise eine Aussage gewinnen. Durch den erhöhten Druck in der Schmelzzone wird das umgebende Gitter etwas mechanisch verdrückt werden. In einer Kugelschale der Dicke

$\Delta R \approx$ einige Gitterkonstanten GK (etwa 4 bis 5 GK) werden viele Zwischengitteratome erzeugt werden, während in der Schmelzzone nach dem Wiedererkalten viele Leerstellen erzeugt worden sein sollten. Es bleibt nun zu überlegen, ob zum Zeitpunkt der Entvölkerung des γ - Niveaus - also etwa 10^{-6} sec nach der Erzeugung des $^{109}\text{Cd}^*$ - der Sondenkern schon in solch einer Schmelzzone zur Ruhe gekommen ist und - falls ja - ob die Schmelzzone schon wieder rekristallisiert ist.

Nach Czjek et.al. [CFL 68] kommt z.B. Ni mit einer kinetischen Energie von einigen MeV in Ni-Metall nach einer Zeit der Größenordnung 10^{-12} sec zur Ruhe. Es ist daher anzunehmen, daß auch das $^{109}\text{Cd}^*$ mit nur bis zu 300 keV kinetischer Energie in Ag-Metall spätestens nach 10^{-12} sec in Ruhe ist.

Nimmt man an, daß die beim Abbremsen an den Kristall abgegebene Energie durch Wärmeleitung verteilt wird, so kommt man auf Abkühlzeiten von $t \approx 10^{-12}$ sec. Das heißt: nach etwa Zeiten der Größenordnung 10^{-12} bis 10^{-11} sec beginnt die Schmelzzone wieder zu rekristallisieren.

Bei dieser raschen Abkühlung von sehr hohen Temperaturen auf die durch die Heizung eingestellte Umgebungstemperatur werden natürlich viele Fehlstellen und Interstitials in den Kristall eingebaut und in ihn eingefroren.

Bis der $^{109}\text{Cd}^*$ Sondenkern nach etwa 10^{-6} sec die untersuchte γ -Strahlung aussendet, ist er also sicher in Ruhe und seine Umgebung ist auf jeden Fall kristallisiert, wenn auch mit vielen zusätzlichen Fehlstellen behaftet.

3. Die Kristallkonfigurationsänderungsfrequenz Ω^{tot} bei thermischem Gleichgewicht und bei Existenz von Strahlenschäden

In metallischen f.c.c. Kristallen - wie Ag - ändert sich die Gitterkonfiguration in der Umgebung eines bestimmten Sondenkerns innerhalb des Kristalls im wesentlichen durch die Diffusion von unbesetzten Gitterplätzen. Die Konfigurationsänderungsfrequenz Ω^{tot} ist proportional zur Platzwechselfrequenz Ω und zur Anzahl N^v der die Sonde umgebenden Fehlstellen ($v \hat{=}$ vacancy).

Ist Ω_0 eine typische Schwingungsfrequenz eines Atoms um seinen Gitterplatz, E_M^M die Wanderungsenergie ($M \hat{=}$ migration, $v \hat{=}$ vacancy) der Fehlstelle, so gilt:

$$\Omega = \Omega_0 \cdot \exp \left\{ - \frac{E_M^M}{kT} \right\}$$

Mit:

N^V = Anzahl der Atomkerne in einem Volumen V um den Sondenkern

$N^{\bullet}$ = Anzahl der Fehlstellen in V

$C^{\bullet}$ = Konzentration der Fehlstellen in v

C^{th} = thermisch gebildeter Anteil von $C^{\bullet}$

C^{irr} = durch Bestrahlung gebildeter Anteil von $C^{\bullet}$

E^F = Bildungsenergie (F = formation) der thermisch erzeugten Fehlstellen

gilt:

$$\Omega^{\text{tot}} = \Omega \cdot N^{\bullet}$$

$$N^{\bullet} = N^V \cdot C^{\bullet} = N^V \cdot (C^{\text{th}} + C^{\text{irr}})$$

$$C^{\text{th}} \propto \exp \left\{ - \frac{E^F}{kT} \right\}$$

Nach Reimers [Rei 68] gilt für die Konzentration der thermisch in einem Ag-Kristall gebildeten Fehlstellen für Temperaturen T, die kleiner als die Schmelztemperatur T_m sind:

$$C^{1\bullet \text{th}}(T) < C^{1\bullet \text{th}}(T = T_m) = 1.4 \cdot 10^{-4} \quad (1\bullet \hat{=} \text{Monovacancy})$$

$$C^{2\bullet \text{th}}(T) < C^{2\bullet \text{th}}(T = T_m) = 8.0 \cdot 10^{-6} \quad (2\bullet \hat{=} \text{Divacancy})$$

Nach Chadderton [[Cha 65], p.29] ist die Anzahl N_d der "displaced atoms", die ein Cd-Atom bei der Abbremsung von der kinetischen Energie E zur Ruhe erzeugt:

$$N_d = \frac{E}{2 E_d}$$

(mit E_d = "displacement energy" = 25 eV). Für die Schmelzzone erhält man so eine Fehlstellenkonzentration von

$$C^{\text{irr}} \approx 2\%$$

Aus Geometrie Gründen gilt - falls die Bindung der beiden Fehlstellen einer Doppelvacancy unberücksichtigt bleibt -

$C^{2v \text{ irr}} = 6 (C^{1v \text{ irr}})^2$ [[She 63], p.78] . Zusammen mit der Bilanzgleichung $C^{v \text{ irr}} = C^{1v \text{ irr}} + 2 C^{2v \text{ irr}}$ ergibt sich $C^{1v \text{ irr}} = 1.67 \%$ und $C^{2v \text{ irr}} = 0.165 \%$

Nach Erginsoy, Vineyard und Shimizu [EVS 65] ergibt sich aus Computerrechnungen ebenfalls $N_d = \frac{E}{2 E_d}$, wobei E_d aber zu ungefähr 50 eV bestimmt wird. Hier erhält man für die Schmelzzone $C^{v \text{ irr}} \approx 1 \%$. Nach den vineyardschen Rechnungen sind an $C^{v \text{ irr}}$ die monovacancies mit 0.69 %, die Divacancies mit 0.155 % beteiligt.

Sowohl nach Chadderton als nach Vineyard kommt die Fehlstellenkonzentration um den Sondenkern also in die Promille- bis Prozent-Gegend. Das heißt aber: für die nächste Umgebung des Sondenkerns gilt auf jeden Fall

$$C^{v \text{ th}} \ll C^{v \text{ irr}}$$

Daher kann $C^v \approx C^{v \text{ irr}}$ gesetzt werden. Das bedeutet aber, daß sich die Temperaturabhängigkeit von Ω^{tot} auf die Proportionalität zu $\exp \left\{ - \frac{E_M}{KT} \right\}$ reduziert.

Auf die Frage: Wie lange lebt die Überschußfehlstellenkonzentration? oder: Wie schnell stellt sich das thermische Gleichgewicht ein? soll später eingegangen werden.

Für das folgende setzen wir zunächst voraus:

Die Konzentration $C^{v \text{ irr}}$ lebe so lange, daß sie in dem Beobachtungszeitraum von einigen Mikrosekunden als konstant angesehen werden kann.

4. Erklärung des Temperaturverlaufs der Relaxation des Alignements durch Fehlstellendiffusion

Im folgenden soll kurz das Modell einer Diffusionsrelaxation [Sch 69] [Sie 70] [BCM 70] beschrieben werden. Wie im vorigen Abschnitt geschildert, entstehen durch den Beschuß des Kristallgitters mit geladenen Teilchen aufgrund des übertragenen Rückstoßes Störstellen im Kristall und zwar in der Nachbarschaft des Sondenkerns. Eine Defektstelle in einem Gitter kubischer Symmetrie zerstört die Ladungssymmetrie am Ort des isomeren Kerns. Es ergibt sich ein resultierender elektrischer Feldgradient $V_{z'z'}$ am Kernort.

Ändert sich die Kristallkonfiguration in - relativ zur Larmorperiode T_L - kurzen Zeiträumen τ_c , so ergibt sich eine fluktuierende Quadrupolwechselwirkung, falls das elektrische Quadrupolmoment Q des angeregten Niveaus ungleich Null ist.

Nach Abragam tritt dann eine exponentielle Dämpfung der Spinrotation auf, was im Fall der stroboskopischen Beobachtung der Larmorpräzession eine Verbreiterung und Abschwächung der Resonanzkurve bedingt.

Mit den Definitionen

$$Q = \frac{3}{80} \cdot \frac{k(k+1)}{I^2(2I-1)^2} \cdot [4I(I+1) - k(k+1) - 1]$$

I = Kernspin

K = Ordnung der Legendrepolynome

$\overline{V_{z'z'}^2}$ = mittlerer quadratischer Feldgradient

$$\overline{\omega_Q^2} = \left(\frac{eQ}{\hbar}\right)^2 \cdot \overline{v_{Z,Z'}^2} = \text{mittlere quadratische Quadrupolwechselwirkungsfrequenz}$$

τ_c = Korrelationszeit = mittlere Zeitdauer einer Kristallkonfiguration

ergibt sich gemäß Kapitel II.3 für den Relaxationskoeffizienten λ_{Rel} :

$$\lambda_{\text{Rel}} = (T_{\text{Rel}})^{-1} = C \cdot \overline{\omega_Q^2} \cdot \tau_c$$

Setzt man voraus, daß die Gitterstörung nicht aus amorphen Zonen sondern aus lokalisierten Gitterpunktdefekten besteht, so wird eine Änderung der Konfiguration durch den Sprung eines Atoms von einem Gitterplatz auf einen benachbarten, das heißt von einem Potentialminimum auf das benachbarte herbeigeführt. Für solch einen Sprung ist eine kritische Aktivierungsenergie erforderlich, um die Potentialbarriere zu überwinden.

Die Korrelationszeit τ_c ist gleich dem Reziproken der Konfigurationsänderungsfrequenz Ω^{tot} , also:

$$\tau_c = (\Omega^{\text{tot}})^{-1}$$

Somit ergibt sich der Relaxationskoeffizient λ_{Rel} zu:

$$\lambda_{\text{Rel}} = F \cdot \exp\left\{\frac{E^M}{kT}\right\}$$

$$\text{mit: } F = C \cdot \overline{\omega_Q^2} \cdot (\Omega^{\text{tot}})^{-1} \quad \text{und} \quad \Omega^{\text{tot}} = N^{\text{v}} \cdot \Omega_0$$

und der Abschwächungsfaktor $G(T)$ zu:

$$G(T) = G(\lambda_{\text{Rel}}) = \frac{1}{1 + \frac{\tau_N \cdot \lambda_{\text{Rel}}}{1 + \frac{1}{4} A_2(\alpha) \cdot A_2(\gamma)}}$$

$$= \frac{1}{1 + \frac{\tau_N \cdot F \cdot \exp\left\{\frac{E^M}{kT}\right\}}{1 + \frac{1}{4} A_2(\alpha) \cdot A_2(\gamma)}}$$

5. Ansatz zu einer Erklärung der experimentellen Daten

Unter den speziellen Voraussetzungen

α .) Existenz nur einer Fehlstellensorte

β .) $c^{th} \ll c^{irr}$

γ .) c^{irr} unabhängig von der Zeit t

wurde die theoretische Funktion $R = R_0 \cdot G(T)$ für die Stroboskopieresonanzamplitude an die experimentell bestimmten Werte $R_{exp}(T)$ durch einen "least square fit" angepasst.⁺⁾

Es ergab sich: $E^M = (0.268 \pm 0.015) \text{ eV}$

$F = (1.61 \pm 0.39) \text{ kHz}$

$A_2(\alpha) \cdot A_2(\gamma) = (0.152 \pm 0.003)$

Auf die Voraussetzungen α , β , γ wird noch eingegangen werden.

Es soll nun der hier bestimmte Wert E^M mit aus der Literatur bekannten experimentellen und theoretischen Werten der Aktivierungsenergie für die Wanderung von Fehlstellen in Silber verglichen werden. Dabei sei $E_{i\sigma}^M$ ($i = 1, 2$) die "migrationenergy" für Mono- ($i = 1$) und Di- ($i = 2$) vacancies, E_{int}^M die für Interstitials.

Von mehreren Autoren ([MSe 70], [Rei 68], [SSe 61], [Que 63], [DKo 70]) wurde mit der Tracerdiffusionsmethode

$E_{1\sigma}^M = (0.88 \pm 0.04) \text{ eV}$ und $E_{2\sigma}^M = (0.58 \pm 0.02) \text{ eV}$ gemessen.

⁺⁾ Das Programm ist in USASI - FORTRAN geschrieben und arbeitet auf der CD 3300 des Rechenzentrums der Universität Erlangen - Nürnberg.

Manintveld [Man 52] bestimmte über elektrische Widerstandsmessungen an verformten Ag - drähten aus der Erholungskinetik:

$$E_{1\sigma}^M \sim 1.2 \text{ eV}, \quad E_{\text{Leerstellengruppen}}^M = 0.15 \text{ bis } 0.35 \text{ eV},$$

$$E_{\text{int}}^M \sim 0.6 \text{ eV}$$

Damask, Dienes und Weizer [DDW 59] berechneten unter Zugrundelegen von Morsepotentialen für einen Cu-Kristall

$$E_{1\sigma}^M = 1.3 \text{ eV} \quad E_{2\sigma}^M = 0.2 \text{ eV} \quad E_{3\sigma}^M = 1.9 \text{ eV}$$

Da Cu wie Ag in f.c.c.-Struktur kristallisiert, sollten die Verhältnisse der $E_{1\sigma}^M$ in etwa auf Silber übertragbar sein.

Bartlett und Dienes [BDi 53] erhielten mit Morsepotentialen für Ag:

$$E_{1\sigma}^M = 1.20 \text{ eV} \quad E_{2\sigma}^M = 0.64 \text{ eV}$$

Dabei wurden die Atome in der Nachbarschaft der Fehlstelle an ihrem regulären Gitterplatz festgehalten.

Wynblatt [Wyn 68] berechnete mit denselben Morsepotentialen, aber mit zusätzlicher Relaxation der Atome in der Nachbarschaft der Fehlstelle auf den Ort ihres jeweiligen Potentialminimums:

$$E_{1\sigma}^M = 1.03 \text{ eV}$$

Diese Methode von Wynblatt wurde in dieser Arbeit zur Berechnung von $E_{2\sigma}^M$ angewandt.⁺⁾ Das Programm wurde in eine für den Gebrauch auf der CD 3300 Rechenanlage des Rechenzentrums der Universität Erlangen - Nürnberg passende Form gebracht und sodann $E_{2\sigma}^M$ berechnet.

Es ergab sich $E_{2\sigma}^M = 0.26 \text{ eV}$

+) Ich danke Herrn P. Wynblatt für die Überlassung eines Programmlistings.

Unser Meßwert E^M liegt nun wesentlich tiefer als der aus der Tracermethode gewonnene Wert E_{2G}^M . Er stimmt aber gut mit den Experimenten von Manintveld und unserer theoretischen Rechnung nach der Methode von Wynblatt überein.

Trotz dieser Diskrepanzen sei vorläufig angenommen, daß das hier experimentell bestimmte E^M die Wanderungsenergie von Doppelvacancies ist. Dies würde bedeuten, daß die Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne über Doppelfehlstellendiffusion vor sich geht.

Im nächsten Kapitel soll diese Deutung von einer anderen Seite her kritisch beleuchtet werden.

6. Das Problem der Zeitabhängigkeit von C^{irr}

Wesentliche Voraussetzungen der bisherigen Auswertung der Messung sind: C^{irr} ist zeitlich konstant und $C^{\text{irr}} \gg C^{\text{th}}$.

Beide Forderungen wären erfüllt, wenn sich integral über das beschossene Kristallvolumen ein stationärer Zustand mit $C_{\text{integral}}^{\text{irr}} \gg C^{\text{th}}$ einstellen würde. Bei den geringen Strahlintensitäten, die bei unserem Experiment zugelassen wurden, ist diese Bedingung sicher nicht erfüllbar und daher eine genügend große, zeitlich konstante Fehlstellendichte nicht erklärbar.

Näherungsweise wären obige Bedingungen wenigstens in Mikrobereichen des Kristalls um die Sondenkerne erfüllt, falls die Lebensdauer τ_0 der durch den Beschuß entstandenen Fehlstellen groß gegen die Meßzeit wäre - d.h. $\tau_0 > \tau_N$. Die Voraussetzung $C^{\text{irr}} \gg C^{\text{th}}$ ist nach VI,3 in unmittelbarer Nähe der Sondenkerne zum Zeitpunkt der Anregung sicher gegeben.

Um die Lebensdauer τ_v der Fehlstellenkonzentration C_v^{irr} abzuschätzen, soll die Zeit t_R bestimmt werden, in der eine Fehlstelle bei ihrem "random walk" durch den Kristall im Mittel einen Weg $L = \left(\sum_m \tau_m^2 \right)^{1/2}$ zurücklegt.

Wählt man $L = R + \Delta R$, so ist L der Radius der gestörten Zone (- Definition von R , ΔR siehe Kap. VI,2 -) und man kann sicher sein, daß eine Leerstelle nach dieser Zeit t_R im Mittel mit einem Interstitialatom rekombinieren kann.

Mit: α = Länge eines Sprungs und Ω = mittlere Sprungfrequenz der Fehlstellensorte ergibt sich t_R zu:

$$t_R = \left(\frac{L}{\alpha} \right)^2 \Omega^{-1}$$

Die Größen α und Ω sind für die verschiedenen Fehlstellensorten unterschiedlich. Im folgenden soll dies durch einen Index i_v ($i = 1$ Mono- und $i = 2$ Divacancies) gekennzeichnet werden.

Es sei nun angenommen, daß die Lebensdauer τ_{i_v} in etwa gleich $t_R^{i_v}$ ist.

Für die Sprungfrequenz Ω^{i_v} gilt: $\Omega^{i_v} = \Omega_0^{i_v} \cdot \exp \left\{ - \frac{E_{i_v}^M}{kT} \right\}$. $\Omega_0^{i_v}$ ist die Frequenz, mit der ein Atom des Kristalls um seine Ruhelage schwingt.

In erster Näherung kann man setzen:

$$\Omega_0^{i_v} = \Omega_0 = \text{Debyefrequenz} = \nu_D = \frac{k \cdot \Theta_D}{h}$$

Nach [Her 61] liegt die Debyetemperatur Θ_D für Silber im von uns betrachteten Temperaturbereich zwischen 180 und 220° K. Mit $\Theta_D \approx 200^\circ$ K folgt: $\Omega_0 = 4.2 \cdot 10^{12}$ Hz

Nach Omini [Omi 68] erhält man einen verbesserten Wert für Ω_0^{1v} , der die fehlende Bindung wegen der benachbarten vacancy berücksichtigt, zu:

$$\Omega_0^{1v} = \frac{\Omega_0}{1.85} = 2.25 \cdot 10^{12} \text{ Hz}$$

In Analogie wird sich Ω_0^{2v} wegen der benachbarten Doppel-vacancy nochmals gegen Ω_0^{1v} verringern, was näherungsweise wieder durch denselben Faktor berücksichtigt werden soll, so daß gilt:

$$\Omega_0^{2v} = 1.2 \cdot 10^{12} \text{ Hz}$$

In einem f.c.c.-Kristall der Gitterkonstante GK bewegt sich eine Fehlstelle (- d.h. ihr "Schwerpunkt") bei einem Sprung um:

$$\alpha^{1v} = \frac{GK}{\sqrt{2}} \quad \text{und} \quad \alpha^{2v} = \frac{GK}{2\sqrt{2}}$$

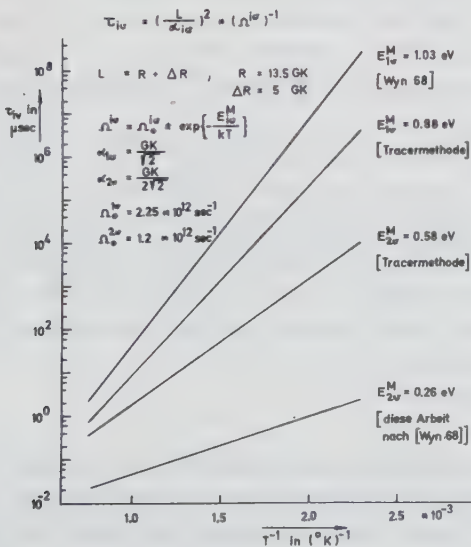


Abb. 12: Darstellung der Temperaturabhängigkeit der Lebensdauer von Mono- und Divacancies

Die Abb.: 12 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Lebensdauer $\tau_{10} = t_R^{10}$ für Einfachleerstellen (E_{10}^M (theoretisch, Wynblatt) = 1.03 eV und E_{10}^M (exp., Tracermethode = 0.88 eV)) und Doppelleerstellen (E_{20}^M (exp, Tracermethode) = 0.58 eV und E_{20}^M (theor., diese Arbeit nach Wynblatt) = 0.26 eV).

Nicht berücksichtigt ist, daß sich die Lebensdauer $\tau_{10}(\tau_{20})$ der Konzentration $G_{10}^{irr}(G_{20}^{irr})$ noch etwas erniedrigen (erhöhen) wird, da auch durch Nachbildung von Doppelleerstellen aus einfachen Verluste (Gewinne) an Mono- (Di-) vacancies eintreten werden.

Die gesamte Abschätzung bietet aber selbstverständlich nur ein sehr rohes Bild, zumal der Radius L der Störzone nicht genau bekannt ist.

An Hand von Abb.: 12 läßt sich folgendes sagen: Die Konzentration G_{10}^{irr} kann im gesamten beobachteten Temperaturbereich wegen der großen Lebensdauer τ_{10} für unser Experiment als nahezu zeitlich konstant angenommen werden.

Die in VI, 5 durchgeführte Identifikation $E_{exp}^M = E_{20}^M$ läßt sich nun aber nicht weiter aufrecht erhalten. Bei einer Migrationsenergie von $E_{20}^M = 0.268$ eV erhält man im gesamten beobachteten Temperaturbereich Divacancy-Lebensdauern $\tau_{20} < 1 \mu\text{sec}$. Das bedeutet: Zum Zeitpunkt der Messung existieren praktisch keine Doppelleerstellen mehr und die Relaxation des Alignements nach dem in VI, 5 postulierten Ansatz ist unmöglich.

In den folgenden Abschnitten soll nun das Modell abgeändert und verschiedene Varianten durchgespielt werden, um zu einer, dem Experiment entsprechenden Deutung der gemessenen Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne zu gelangen.

7. Annahme einer nur kurz nach der Anregung wirkenden elektrischen Quadrupolwechselwirkung

Nimmt man an, daß die zusätzlich zum externen Magnetfeld wirkende elektrische Quadrupolstörung nur während der ersten Mikrosekunde nach der Anregung wirkt, d.h. bevor die Messung beginnt, und die $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne danach eine praktisch ungestörte Larmorpräzession vollführen, so wird die meßbare Größe des Alignements immer noch temperaturabhängig sein. Die Stroboskopieline sollte auch in diesem Fall mit sinkender Temperatur abgeschwächt werden, aber ihre Breite sollte der natürlichen Linienbreite

$$\frac{\Delta B}{B} = \frac{1}{T_N} \cdot \frac{T_0}{\hbar \tau} \text{ entsprechen.}$$

Experimentell stellt man aber für Temperaturen $T < T_m$ eine deutliche Verbreiterung der Stroboskopieline fest (siehe Abb.: 8).

Man muß daher mit anderen Modellen versuchen, die experimentell bestimmte Abschwächung des Alignements mit sinkender Temperatur zu erklären.

Im Folgenden soll versucht werden, ein Modell zu konstruieren, das in der Lage ist, die experimentellen Daten zu erklären.

8. Modell der Diffusion des Cd^* innerhalb von Agglomeraten

In Festkörpern kommt es vor, daß Impurity-Atome an Fehlstellen gebunden sind. Sauerstoffatome bilden beispielsweise mit den Fehlstellen des Silbers Agglomerate $[0,1\sigma]$ mit einer beträchtlichen Bindungsenergie von $E^B = 0.35 \text{ eV}$ [Rei 68].

In dem jetzt zu konzipierenden Modell sei folgendes vorausgesetzt:

Jedes Cd^* sei während nahezu seiner gesamten Lebensdauer τ_N in einem Agglomerat $[\text{Cd}^*, i\sigma]$ ($i = 1, 2$) gebunden und die Diffusion des Cd^* innerhalb der Agglomerate gehe mit $E^M \neq E_{i\sigma}^M$ vor sich.

Eine Cd^* -Impurity (bzw. eine Vacancy) stellt in einem sonst regulären Silberkristall eine zusätzliche lokalisierte positive (bzw. negative) Punktladung dar. Wegen der abschirmenden Wirkung der Leitungselektronen des Metalls können diese Punktladungen nur dann miteinander wechselwirken, wenn sie unmittelbar benachbart sind. Dann aber besitzen sie wegen ihrer elektrostatischen Energie eine Bindung aneinander. Wegen der gestörten Kristallsymmetrie ist das Cd^* in einem solchen Agglomerat einem Feldgradienten $V_{z'z'}$ ausgesetzt. Bei Platzwechsel des Cd^* innerhalb des Agglomerates ändert sich $V_{z'z'}$. Die für diese Diffusion aufzubringende Wanderungsenergie E^M ergibt sich zu:

$$E^M = E_{i\sigma}^M - \Delta E_{el}$$

ΔE_{el} ist der Maximal-Betrag der Änderung der elektrostatischen Energie des Cd^* relativ zu den Leerstellen bei der Wanderung von einem Gitterplatz zum vorher leeren benachbarten. Ein Ag-Atom muß, um ein solches Agglomerat aufzubrechen, außer $E_{i\sigma}^M$ noch die zusätzliche Energie E^B aufbringen. Ist $t_{i\sigma}^{i\sigma}$ die mittlere Zeit, nach der der nächste Diffusionssprung erfolgt, so lebt das Agglomerat im Mittel um einen Faktor $a = \exp\left\{\frac{E^B}{kT}\right\}$ länger als $t_{i\sigma}^{i\sigma}$. Besteht nun

die Chance, daß in der Zeit $t_2^{i\sigma} = a \cdot t_1^{i\sigma}$ schon die nächste Fehlstelle zum Cd^* hingewandert ist, so kann man sagen: ist ein Cd^* einmal an eine Fehlstelle gebunden, so wird dieser Zustand praktisch während der gesamten Lebensdauer τ_N aufrechterhalten.

Setzt man gemäß Kapitel VI,3 für die Konzentrationen an Mono- und Di-vacancies

$$C^{1\sigma \text{ irr}} = 0.69 \% \quad C^{2\sigma \text{ irr}} = 0.155\%$$

so wird bei einer Annahme von $E^B = 0.40 \text{ eV}$ die Größe a bei $[\text{Cd}, 1\sigma]$ für $T < T_m$ und bei $[\text{Cd}, 2\sigma]$ für $T < 800^\circ \text{ K}$ so groß, daß das Cd -Atom dauernd im gebundenen Zustand bleibt, wenn es erst einmal in ihm ist.

Damit während der Messung sämtliche Cd^* in solchen Agglomeraten gebunden sind, muß die Zeit $t_3^{i\sigma}$, die eine Fehlstelle im Mittel benötigt, um an ein anfänglich ungebundenes Cd^* zu gelangen, kleiner als die Zeit bis zum Beginn der Messung (ca. $2.0 \mu\text{sec}$) sein.

Diese Bedingung ist für $[\text{Cd}, 1\sigma]$ nur für $T > 800^\circ \text{ K}$
und für $[\text{Cd}, 2\sigma]$ nur für $T > 600^\circ \text{ K}$ erfüllt.

Unter Voraussetzung einer Bindungsenergie von etwa 0.40 eV gilt das Modell $[\text{Cd}, 1\sigma]$ für $T_m > T > 800^\circ \text{ K}$ und
 $[\text{Cd}, 2\sigma]$ für $800^\circ \text{ K} > T > 600^\circ \text{ K}$.

Das Modell $[\text{Cd}, 2\sigma]$ muß auch deshalb auf $T < 800^\circ \text{ K}$ beschränkt werden, da für größere Temperaturen T wegen der dann zu kurzen Lebensdauer der Divacancies eine Regeneration der Agglomerate nicht vorstellbar ist.

Aus Tracerdiffusionsmessungen von Cd in Ag ist bekannt:

$$E_{\text{Cd in Ag}}^M = 0.72 \text{ eV}$$

$$(E_{\text{Cd in Ag}}^M = E_{\text{experimentell}}^{\text{Aktivierung}} - E_{1\sigma}^F = (1.82-1.10) \text{ eV} = 0.72 \text{ eV} \quad [T \text{ S1 } 54]).$$

Das Modell [Cd, 1v] ist also nicht in der Lage, die gemessene Aktivierungsenergie von $E^M = 0.268$ eV zu erklären, das Modell [Cd, 2v] würde einer solchen Migrationsenergie nicht widersprechen, ist aber nicht auf $T > 800^\circ$ K anwendbar und bereitet auch bei Anwendung auf $T < 600^\circ$ K Schwierigkeiten, - einem Temperaturgebiet, in dem die Messung noch deutlich einen von etwa 2 % auf Null (bei 500° K) abklingenden Effekt zeigt.

9. Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ durch Diffusion auf inneren Oberflächen

Alle bisher entwickelten Vorstellungen über die Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne beruhen auf der Annahme: die Cd^* -Sondenkerne sehen eine nur von Punktdefekten gestörte Kristallumgebung.

Beim Rekristallisieren der Seegerzone wird sich das Material wohl vom Rand her verfestigen. Da aber auf Grund von Stoßprozessen viele Ag-Atome rund um die Schmelzzone auf Zwischengitterplätzen zurückbleiben, wird das rekristallisierte Silber möglicherweise in der Mitte einen Hohlraum hinterlassen. Cd^* -Atome, die auf der so entstehenden inneren Oberfläche zur Ruhe kommen, werden auf dieser entlangdiffundieren und dabei auch verschiedenen Feldgradienten ausgesetzt sein. Die gemessene Aktivierungsenergie E^M wäre dann als Oberflächenwanderungsenergie des Cd auf Ag zu interpretieren.

Gegen diese Art der Deutung spricht, daß wahrscheinlich nicht alle Cd^* -Atome auf solchen Plätzen zur Ruhe kommen werden, sondern ein Teil auch im Inneren des Kristalls.

Zusammenfassend kann man sagen: Keiner der bisher angeführten Mechanismen reicht für sich allein aus, die gemessene Kurve zu erklären. Im folgenden soll nun die willkürliche Annahme nur eines einzigen Relaxationsmechanismus fallengelassen werden.

10. Relaxation bei Annahme von zwei Mechanismen

Betrachtet man die Abbildung 13, die die Relaxationskonstante $\lambda_{\text{Rel}}(T)$ bei Annahme nur eines einzigen Relaxationsmechanismus zeigt, so erkennt man deutlich drei Bereiche. In den Temperaturbereichen α und β scheint λ_{Rel} jeweils exponentiell von T^{-1} abzuhängen, im Bereich γ gilt $\lambda_{\text{Rel}} < 10^{-2} \mu\text{sec}^{-1}$ und das Targetmaterial ist flüssig.

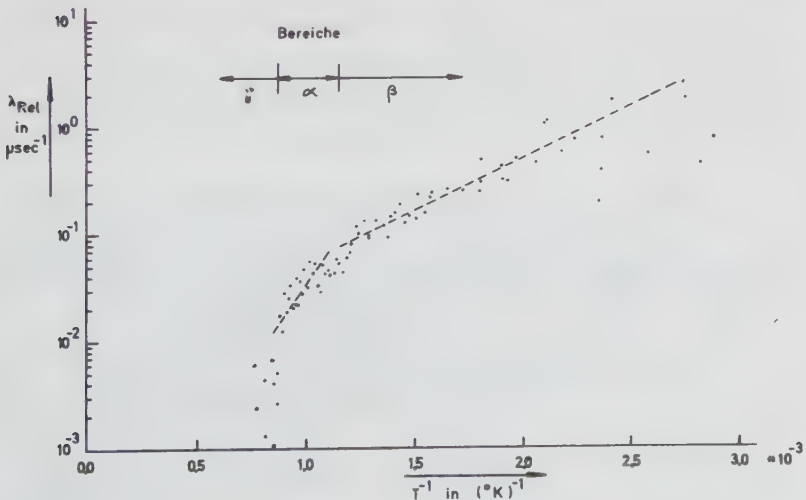


Abb. 13: Die Relaxationskonstante λ_{Rel} in Abhängigkeit von der Targettemperatur T unter der Annahme eines einzigen Relaxationsmechanismus

Bei 795°K und 920°K ist die Resonanzamplitude R und die Breite der Resonanzkurve $\frac{\Delta B}{B}$ im Rahmen der Fehler nahezu gleich (siehe Abb. 8). $\Delta B/B$ verhält sich eher umgekehrt als erwartet.

Zugleich erkennt man im Verlauf des Abschwächungsfaktors $G(T)$ (siehe Abb. 9) zwischen 800°K und 850°K einen deutlichen Knick. Im Bereich zwischen 800°K und 1000°K verläuft die Krümmung von $G(T)$ gerade umgekehrt als erwartet.

Zur Erklärung sei folgendes Modell konzipiert: Es gebe 2 Mechanismen I und II, die unterschiedliche Feldgradienten und damit Quadrupolwechselwirkungsenergien hervorrufen, mit stark verschiedenen Wanderungsenergien $E_I^M > E_{II}^M$. Ein Teil ξ der Sondenkerne sehe nur Mechanismus I, der Anteil $\eta = (1 - \xi)$ sei II ausgesetzt.

wegen $E_I^M > E_{II}^M$ gelte im Temperaturbereich α : die Fluktuation von II sei so schnell, daß $G(T) \approx 1$ schon eine gute Näherung ist, im Temperaturbereich β sei I schon praktisch statisch, so daß $G(T) = 0$ gilt. Dann erhält man für den theoretischen Verlauf der Resonanzamplitude:

$$R = R_0 \cdot G(T) \quad G(T) = \xi \cdot G_1(T) + \eta \cdot G_2(T) \quad \text{mit:}$$

$$\alpha.) \quad T_m > T > 850^{\circ}\text{K} : G_1(T) = \frac{1}{1 + \frac{\tau_N \cdot \lambda_{\text{Rel}}^{\text{I}}}{1 + \frac{1}{4} A_2(\omega) \cdot A_2(\gamma)}} \quad ; \quad G_2(T) = 1.$$

$$\lambda_{\text{Rel}}^{\text{I}} = F^{\text{I}} \cdot \exp\left\{\frac{E_I^M}{kT}\right\}$$

$$\beta.) \quad 850^{\circ}\text{K} > T : G_1(T) = 0. \quad ; \quad G_2(T) = \frac{1}{1 + \frac{\tau_N \cdot \lambda_{\text{Rel}}^{\text{II}}}{1 + \frac{1}{4} A_2(\omega) \cdot A_2(\gamma)}}$$

$$\lambda_{\text{Rel}}^{\text{II}} = F^{\text{II}} \cdot \exp\left\{\frac{E_{II}^M}{kT}\right\}$$

$$\gamma.) \quad T > T_m : G_1(T) = 1. \quad ; \quad G_2(T) = 1.$$

Ein "least square fit" liefert die in der folgenden Tabelle aufgeführten Werte der Parameter. Leider sind wegen der großen statistischen Fehler der Meßpunkte auch die Fehler der Fitergebnisse recht beträchtlich (- für F^I kann nur ein Bereich angegeben werden, in dem der wahrscheinlichste Wert liegen wird -).

$A_2(\alpha) A_2(\gamma)$	=	0.150 ± 0.003
E_I^M	=	$(1.2 \pm 0.8) \text{ eV}$
E_{II}^M	=	$(0.216 \pm 0.020) \text{ eV}$
ξ	=	(0.37 ± 0.06)
$0.3 \text{ Hz} < F^I < 2.3 \text{ Hz}$		
F^{II}	=	$(3.9 \pm 1.3) 10^3 \text{ Hz}$

Tabelle der Fitergebnisse:

Eine Bestimmung der Relaxationskonstanten $\lambda_{\text{Rel}}^I(T)$ und $\lambda_{\text{Rel}}^{II}(T)$ aus den Meßdaten unter Voraussetzung von 2 Relaxationsmechanismen und Verwendung der Fitparameter R_0 und ξ des "least square fits" ergibt den in Abb.: 14 dargestellten Verlauf. Es sind deutlich 2 Exponentialfunktionen erkennbar. Die eingezeichneten Geraden entsprechen den gefitteten Größen.

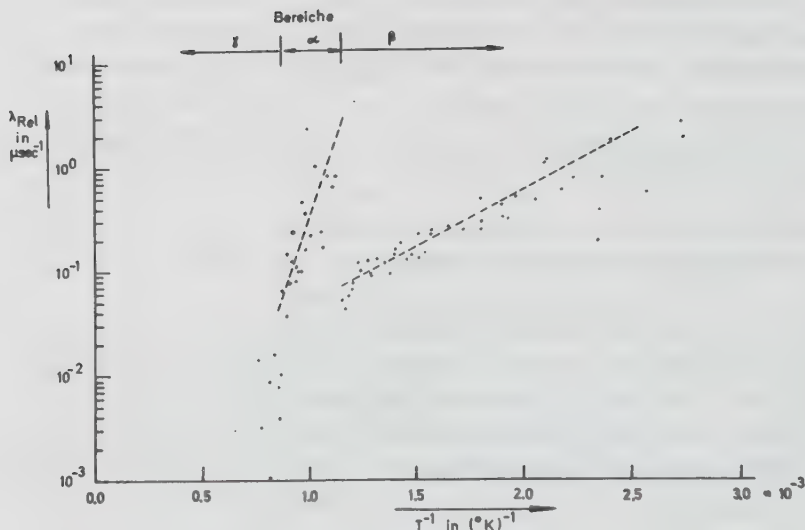


Abb. 14: Die Relaxationskonstante λ_{Rel} in Abhängigkeit von der Targettemperatur T bei Annahme von zwei Relaxationsmechanismen

11. Interpretation der Mechanismen I und II

Es bleibt nun die Aufgabe, die im vorigen Kapitel postulierten 2 Mechanismen genauer zu interpretieren. Es kommen folgende Modelle in Frage:

I a) Monovacancydiffusion

I b) Diffusion des Cd^* innerhalb von $[\text{Cd}, 1\text{u}]$ Agglomeraten

II a) Divacancydiffusion

II b) Diffusion des Cd^* innerhalb $[\text{Cd}, 2\text{u}]$

II c) Diffusion des Cd^* auf inneren Oberflächen

Zwischen Ia und Ib ist wegen der großen Fehler von E_I^M keine Unterscheidung möglich.

IIa widerspricht dem aus Tracermethoden gewonnenen $E_{2\omega}^M = 0.58$ eV und bringt die in VI,6 geschilderten Schwierigkeiten mit der zu geringen Lebensdauer der Divacancies. Die Interpretationen IIb und IIc widersprechen beide nicht den experimentellen Gegebenheiten. Eine Unterscheidung ist - wie bei I - nicht möglich.

Man könnte also die Relaxation des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne mit folgenden Modellen erklären:

A :	Ia, b	und	IIb
B :	Ia, b	und	IIc
C :	Ia, b	und	IIb, c

In allen 3 Fällen ist ξ der Anteil der Sondenkerne, der nur Störungen nach I sieht.

Im Fall A ist η der Anteil der Kerne, der in Agglomeraten $[\text{Cd}, 2\omega]$ gebunden ist, bei B ist η der Anteil an Cd^* Kernen, der auf inneren Oberflächen zur Ruhe kommt, und bei Modell C würde η alle Kerne umfassen, die in Agglomeraten $[\text{Cd}, 2\omega]$ gebunden sind oder sich auf inneren Oberflächen befinden. Da die $G(T)$ -Kurve nur die eine Struktur bei 800 bis 850° K zeigt, gibt es keine Möglichkeit, IIb und IIc zu trennen.

Im Fall C kann der Fit daher nur einen Mittelwert für die Aktivierungsenergien und die Quadrupolwechselwirkungsfrequenzen von IIb und IIc liefern.

12. Die Quadrupolwechselwirkungsfrequenz $\overline{\omega_Q}$ und die Gültigkeit der Theorie von Abragam und Pound bei den verschiedenen Modellen

Sämtliche in dieser Arbeit zur Diskussion gestellten Modelle für den Mechanismus der Abnahme des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne beruhen auf dem Ansatz einer Diffusionsrelaxation. Die allgemeine Form des Abschwächungsfaktors $G(T)$ ist daher in allen Fällen:

$$G(T) = \frac{1}{1 + \frac{N}{1 + 1/4} \cdot \frac{F}{A_2(\alpha)} \cdot \exp\left\{\frac{E^M}{KT}\right\} \cdot A_2(\gamma)}$$

$$F = Q \cdot \overline{\omega_Q^2} \cdot (\Omega_o^{\text{tot}})^{-1}$$

Nur die Interpretation von Ω_o^{tot} und E^M ist unterschiedlich.

Die folgende Tabelle enthält die Definition von Ω_o^{tot} und die aus den Fitergebnissen nach VI,10 (mit N^V = Anzahl der nächsten Nachbarn = 12) für

$$\overline{\omega_Q} = (\overline{\omega_Q^2})^{1/2} = \left(\frac{F}{Q} \cdot \Omega_o^{\text{tot}}\right)^{1/2} \text{ gewonnenen werte.}$$

	I a	I b	II a	II b	II c
$\Omega_o =$	Ω_o^{1V}	Ω_o^{1V}	Ω_o^{2V}	Ω_o^{2V}	$\tilde{\Omega}_o = \Omega_o^{2V}$
$N^V =$	$N^{1V} = N^V \cdot C^{1V \text{ irr}}$	1	$N^{2V} = N^V \cdot C^{2V \text{ irr}}$	1	1
$\Omega_o^{\text{tot}} =$	$\Omega_o^{1V} \cdot N^{1V}$	Ω_o^{1V}	$\Omega_o^{2V} \cdot N^{2V}$	Ω_o^{2V}	$\tilde{\Omega}_o$
$\overline{\omega_Q} \text{ (in Hz)} =$	$4.3 \cdot 10^6$	$1.5 \cdot 10^7$		$6.8 \cdot 10^8$	$6.8 \cdot 10^8$

Prüft man die in II,3 geforderten Bedingungen für die Gültigkeit der Theorie von Abragam und Pound nach, so erhält man:

	Temperaturbereich	τ_c/τ_N	$\overline{\omega_a} \cdot \tau_c$	$\omega_L \cdot \tau_c$
Ia	$T > 1000^\circ \text{ K}$	$\ll 1$	$< 0.6 < 1$	$< 0.22 \ll 1$
Ib	$T > 800^\circ \text{ K}$	$\ll 1$	$< 0.22 \ll 1$	$< 0.023 \ll 1$
IIb, c	$T > 400^\circ \text{ K}$	$\ll 1$	$< 0.033 \ll 1$	$< 8 \cdot 10^{-4} \ll 1$

Zusammenfassend läßt sich sagen:

Für Ia sind die Bedingungen der Theorie von Abragam und Pound nur schlecht erfüllt (- in etwa für $T > 1000^\circ \text{ K}$ -), wogegen sie für Ib recht gut auch bis herab zu $T = 800^\circ \text{ K}$ erfüllt sind. Eine Entscheidung zwischen beiden Modellen ist aber nicht möglich. Die für Ib nötige Voraussetzung von $E^B = 0.40 \text{ eV}$ spricht wegen des großen Wertes gegen Ib und für Ia.

IIb und IIc erfüllen gleich gut die Bedingungen der Theorie von Abragam und Pound.

Ein gleichzeitiges Wirken von Ia, b und IIb, c würde den experimentellen Gegebenheiten noch am ehesten entsprechen.

VII. SCHLUSSBEMERKUNG

Mit der Messung des g -Faktors des 469 keV, $\frac{11}{2}^-$ Niveaus im ^{109}Cd [Jae 70] wurde ein empfindlicher Sondenkern für festkörperphysikalische Untersuchungen erschlossen.

Es war Aufgabe dieser Arbeit, das Verhalten des Alignements der $^{109}\text{Cd}^*$ Kerne im Temperaturbereich von 400 bis 1300°K zu untersuchen.

Die Abnahme des Alignements mit sinkender Temperatur konnte als Diffusionsrelaxation erklärt werden. Da ein einziger Relaxationsmechanismus nicht zur Erklärung der experimentellen Daten ausreichte, wurde ein Ansatz mit zwei Mechanismen mit verschiedenen Aktivierungsenergien E_I^M und E_{II}^M postuliert.

Nach diesem Modell relaxiert ein Teil ξ der Kerne mit einer Aktivierungsenergie $E_I^M = (1.2 \pm 0.8) \text{ eV}$, ein Anteil $\eta = (1 - \xi)$ mit $E_{II}^M (0.22 \pm 0.02) \text{ eV}$.

Ob unter I die Diffusion von Monovacancies oder die Diffusion von Cd^* innerhalb von Agglomeraten [$\text{Cd}, 1\sigma$] zu verstehen ist, konnte wegen der großen Fehler von E_I^M nicht entschieden werden. Ebenso sind für II zwei Mechanismen möglich: die Diffusion von Cd^* in [$\text{Cd}, 2\sigma$] Agglomeraten und die Wanderung von Cd^* auf inneren Oberflächen.

In einer weiteren Arbeit soll versucht werden, die Wanderungsenergien genauer festzulegen - insbesondere die Migrationsenergie E_I^M -, um dann eine endgültige Aussage über die beiden konkurrierenden Relaxationsmodelle im Temperaturbereich $T_m > T > 800^\circ\text{K}$ treffen zu können. Vorbereitende Arbeiten - wie der Bau einer Temperaturregelung für die Targetheizung - sind im Gange.

L I T E R A T U R V E R Z E I C H N I S

- [AbP 53] A. Abragam and R. V. Pound, Phys. Rev. 92, 943, (1953)
- [Abr 61] A. Abragam, The principles of nuclear magnetism, Oxford, (1961)
- [BCM 70] H. Bertschat, J. Christiansen, H. -E. Mahnke, E. Recknagel, G. Schatz, R. Sielemann, and W. Witthuhn, Phys. Rev. Lett. 25, 102(C), (1970)
- [BDi 53] J. H. Bartlett, G. J. Dienes, Phys. Rev. 89, 848, (1953)
- [BFJ 70] D. H. Bloch, D. Frosch, E. J. Jaeschke, H. Pauli and E. Rinsdorf, Proceedings of the international Conference on Hyperfine Interactions detected by Nuclear Radiation, Rehovot, Israel, p. 356, (1970)
- [BFr 70] D. Bloch, D. Frosch, E. Jaeschke und E. Rinsdorf, Jahresbericht des Physikalischen Instituts, Erlangen, (1968/69), S. 140.
- [Cha 65] L. T. Chadderton, Radiation Damage in Chrystals, Methuen and Co., Ltd., London, (1965)
- [CFL 68] G. Czjek, J. L. G. Ford, J. C. Love, F. E. Obenshain and H. H. F. Wegener, Phys. Rev. 174, 331, (1968)
- [CMR 68] J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, D. Riegel, G. Weyer and W. Witthuhn, Phys. Rev. Lett. 21, 554, (1968)
- [DDW 59] A. G. Damask, G. J. Dienes and V. G. Weizer, Phys. Rev. 113, 781, (1959)
- [DKo 60] M. Doyama and J. S. Koehler, Phys. Rev. 119, 939, (1960)
- [EVS 65] G. Erginsoy, G. H. Vineyard and A. Shimizu, Phys. Rev. 139, A 118, (1965)
- [Hel 71] D. Helb, Kinematikprogramm, private Mitteilung
- [Her 61] F. H. Herstein, Adv. in Phys. 10, 313, (1961)
- [Jae 70] E. Jaeschke, Dissertation, Erlangen, (1970)
- [KMB 61] H. Krebiel, U. Meyer-Berkhout, Z. f. Phys. 165, 99, (1961)

- [LHP 68] C. M. Lederer, J. M. Hollander, I. Perlman, "Table of Isotopes", New York, (1968)
- [LSS 61] V. A. J. van Lint, R. A. Schmitt and G. S. Suffredini, Phys. Rev. 121, 1457, (1961)
- [Man 52] J. A. Manintveld, Nature 169, 623, (1952) und Handbuch der Physik VII/1, S. 472, (1955)
- [MCC 65] A. L. Mc.Carthy, B. L. Cohen, L. H. Goldman, Phys. Rev. 137, B 250, (1965)
- [MCC 66] A. L. Mc.Carthy, T. W. Conlon, Phys. Rev. 147, 881, (1966)
- [MSe 70] H. Meerer, A. Seeger, Phys. stat. sol. 39, 647, (1970)
- [Omi 68] M. Omini, Il Nuovo Cimento 54 B, 116, (1968)
- [Que 63] Y. Querè, J. Phys. Soc. Japan 18, 91, Suppl.III, (1963)
- [Rei 68] P. Reimers, Metall 22, 577, (1968)
- [Sch 69] G. Schatz, Diplomarbeit, HM I Berlin, (1969)
- [See 55] A. Seeger, Theorie der Gitterfehlstellen, Handbuch der Physik VII,1, S. 383, (1955)
- [She 63] P. G. Shemon, Diffusion in Solids, Mc Graw Hill Book Company, (1963)
- [Sie 70] R. Sielemann, Diplomarbeit, HM I Berlin, (1970)
- [SSe 61] Schule, Seeger, Z. Naturforschung 16 a, 323, (1961)
- [StF 64] R. M. Steffen, H. Frauenfelder, Perturbed angular correlations, edited by Matthias, Karlsson, Siegbahn, North. Holl. Publ. Comp.- Amsterdam, p.1, (1964)
- [TSl 54] C. T. Tomizuka, L. Sliftein, Phys. Rev. 96, 610, (1954)
- [Wha 57] W. Whaling, Handbuch d. Physik XXXIV, 193, Heidelberg, (1957)
- [Wit 68] J. Witte, Dissertation, Erlangen, (1968)
- [Wyn 68] P. Wynblatt, Phys. Chem. Sol. 29, 215, (1968) and private communication

LEBENS LAUF

Eike Rinsdorf

geboren am: 5. 7. 1943

in: Berlin

Eltern: Regierungsrat Walter Rinsdorf (+ 1950)
und Eva Rinsdorf geb. Laudien

Familienstand: seit 6. 8. 1971 verheiratet mit
Gertraud Rinsdorf geb. Breuing

Schulbildung: 1949 bis 1953 Volksschule in Bamberg
1953 bis 1962 Altes Gymnasium Bamberg
(Humanistisches Gymnasium)

Studium: 1962 bis 1968 Physikstudium an der
Universität Erlangen-Nürnberg

Prüfungen: 18. 7. 1962 Reifeprüfung
10. 5. 1965 Physikvordiplom
19. 7. 1968 Physikhauptdiplom

Stellungen: seit September 1968 als wissenschaftlicher
Mitarbeiter am II. Physikalischen Institut
der Universität Erlangen-Nürnberg.
beschäftigt.

Offsetdruck-Fotodruck

J. Hogl, 8520 Erlangen Hauptstr. 109, (Nähe Martin-Luther-Platz) Tel. 22990